WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Integnationales Büro



(51) Internationale Patentklassifikation 6:

C07D 251/18, A01N 43/70, C07D 251/16, 251/22, 405/06

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 97/08156

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum:

6. März 1997 (06.03.97)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP96/03442

A1

(22) Internationales Anmeldedatum: 5. August 1996 (05.08.96)

(30) Prioritätsdaten:

195 31 084.5

24. August 1995 (24.08.95) DE

HOECHST SCHERING AGREVO GMBH [DE/DE]; Miraustrasse 54, D-13509 Berlin (DE).

(72) Erfinder: GIENCKE, Wolfgang; Am Steinberg 45, D-65719 Hofheim (DE). MINN, Klemens; Rossertstrasse 61, D-65795 Hattersheim (DE). WILLMS, Lothar, Königsteiner Strasse 50, D-65719 Hofheim (DE). BIERINGER, Hermann; Eichenweg 26, D-65817 Eppstein (DE). BAUER, Klaus; Doomer Strasse 53D, D-63456 Hanau (DE). ROSINGER, Christopher; Am Hochfeld 33, D-65719 Hofheim (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AU, AZ, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CU, CZ, EE, GE, HU, IL, IS, JP, KG, KP, KR, KZ, LK, LR, LT, LV, MD, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, TJ, TM, TR, TT, UA, UZ, VN, ARIPO Patent (KE, LS, MW, SD, SZ, UG), europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

(54) Title: 2,4- DIAMINO-1,3,5-TRIAZINES, PROCESS FOR THE PRODUCTION THEREOF, AND THE USE THEREOF AS HERBICIDES AND PLANT GROWTH REGULATORS

(54) Bezeichnung: 2,4-DIAMINO-1,3,5-TRIAZINE, VERFAHREN ZU DEREN HERSTELLUNG UND DEREN VERWENDUNG ALS HERBIZIDE UND PFLANZENWACHSTUMSREGULATOREN

(57) Abstract

The invention relates to compounds of formula (I) and salts thereof, wherein R1 is optionally substituted (C1-C6)alkyl or optionally substituted phenyl; A is an optionally substituted hydrocarbon radical and R2, R3, R4, R5, X and n as defined in Claim 1. These compounds are suitable as herbicides and plant growth regulators. The compounds (I) can be produced according to the process set out in Claim 6 by way of partially new intermediates, e.g., of formula (IV) as per Claim 10.

$$\begin{array}{c|c}
R^{2} & N & N & R^{5} \\
N & N & N & C & H - A & & & \\
R^{3} & R^{4} & & & & & \\
\end{array}$$
(I)

(57) Zusammenfassung

Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, worin R¹ ggf. substituiertes (C₁-C₆)Alkyl oder ggf. substituiertes Phenyl ist, A ein ggf. substituiertes Kohlenwasserstoffdiradikal ist und R², R³, R⁴, R⁵, X und n wie in Anspruch 1 definiert sind, eignen sich als Herbizide und Pflanzenwachstumsregulatoren. Die Verbindungen (I) lassen sich nach Verfahren gemäß Anspruch 6 über zum Teil neue Zwischenprodukte, z.B. der Formel (IV) nach Anspruch 10, herstellen.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

			•		
AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	мх	Mexiko
AT	Österreich	GE	Georgien	NE	Niger
ΑÜ	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungam	· NZ	Neuseeland
BF	Burkina Faso	IE	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JР	Japan	RO	Rumänien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG.	Kongo	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CN	China .	LK .	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Togo Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Trinidad und Tobago Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	
ES	Spanien	ML	Mali	US	Uganda
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Vereinigte Staaten von Amerika
FR	Frankreich	MR	Mauretanien	VN	Usbekistan
GA	Gabon	MW	Malawi	A14	Vietnam

2,4-Diamino-1,3,5-triazine, Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung als Herbizide und Pflanzenwachstumsregulatoren

Die Erfindung betrifft das technische Gebiet der Herbizide und Pflanzenwachstumsregulatoren, insbesondere der Herbizide zur selektiven Bekämpfung von Unkräutern und Ungräsern in Nutzpflanzenkulturen.

Es ist bekannt, daß in 6-Stellung substituierte 2-Amino-4-(phenoxyalkyl-amino)-1,3,5-triazine herbizide und pflanzenwachstumsregulierende Eigenschaften besitzen; vgl. WO 94/24086, EP-A-509544, EP-A-492,615. Weiterhin sind bereits 2-Amino-4-[arylamino- oder (hetero)arylalkyl-amino]-6-haloalkyl-1,3,5-triazine mit herbizider Wirkung bekannt; vgl. US-A-3,816,419, WO 90/09378, WO 88/02368.

Die bekannten Wirkstoffe mit einer 4-[(Hetero)arylalkyl-amino]-gruppe enthalten dabei als "Alkyl" jeweils eine Methylenbrücke, welche gegebenenfalls noch verzweigt substituiert ist.

Die bekannten Wirkstoffe weisen bei ihrer Anwendung teilweise Nachteile auf, sei es unzureichende herbizide Wirkung gegen Schadpflanzen, zu geringes Spektrum der Schadpflanzen, das mit einem Wirkstoff bekämpft werden kann, oder zu geringe Selektivität in Nutzpflanzenkulturen. Andere Wirkstoffe lassen sich wegen schwer zugänglicher Vorprodukte und Reagenzien im industriellen Maßstab nicht wirtschaftlich herstellen oder besitzen nur unzureichende chemische Stabilitäten.

Aufgabe der Erfindung ist es, alternative Wirkstoffe vom Typ der 2,4-Diamino-1,3,5-Triazine bereitzustellen, die als Herbizide oder Pflanzenwachstumsregulatoren eingesetzt werden können.

In der Deutschen Patentanmeldung Nr. 19 522 137.0 werden unter anderen Herbizide des genannten Typs vorgeschlagen, die in 6-Stellung am Triazinring einen gegebenenfalls substituierten Cycloalkylrest oder einen Heterocyclus mit einem Sauerstoff-, Stickstoff- oder Schwefelatom enthalten und in 4-Stellung einen Phenylalkylrest mit einer linearen Propylenbrücke aufweisen, die gegebenenfalls noch verzweigt substituiert ist.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Verbindungen der Formel (I) und deren Salze,

worin

 R^1 (C₁-C₆)Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Cyano, Nitro, Thiocyanato, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkinyl, (C_3-C_9) Cycloalkyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und Heterocyclyl mit 3 bis 6 Ringatomen und

1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Ring unsubstituiert oder substituiert ist,

substituiert ist, oder

Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert ist,

- R² und R³ jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino oder Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 10 C-Atomen, vorzugsweise mit 1 bis 6 C-Atomen, oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclyloxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist, oder einen Acylrest oder
 - R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 4 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom die gegebenenfalls weiteren Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S ausgewählt sind und der Rest unsubstituiert oder substituiert ist,
- R⁴ Wasserstoff, Amino, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6
 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen
 Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis
 10 C-Atomen, vorzugsweise mit 1 bis 6 C-Atomen, oder einen
 Heterocyclylrest, Heterocyclyloxyrest oder Heterocyclylaminorest mit
 jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe
 N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder
 substituiert ist, oder einen Acylrest,
- PS Wasserstoff, Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato oder einen Rest der Formel -B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie unten definiert sind,
- A Alkylenrest mit 1 bis 5 linear verknüpften C-Atomen oder Alkenylen oder Alkinylen mit jeweils 2 bis 5 linear verknüpften C-Atomen, wobei jeder der drei letztgenannten Diradikale unsubstituiert oder durch einen oder

mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel -B²-Y² substituiert ist,

(X)_n n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, OH, NH₂, NO₂, CHO, COOH, CN, SCN oder einen Rest der Formel -B°-R, wobei B° wie unten definiert ist und R einen acylischen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 C-Atomen, der unsubstituiert oder substituiert ist, bedeutet, oder einen Rest der Formel -B°-R°, wobei B° wie unten definiert ist und R° einen aromatischen, gesättigten oder teilgesättigten carbocyclischen oder heterocyclischen Rest bedeutet, wobei der cyclische Rest substituiert oder unsubstituiert ist, oder zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,

vorzugsweise X jeweils unabhängig voneinander Halogen, (C_1-C_6) Alkyl, (C_2-C_6) Alkenyl, (C_2-C_6) Alkinyl, (C_1-C_6) Alkoxy, (C_2-C_6) Alkenyloxy, (C_2-C_6) Alkinyloxy, (C_1-C_6) Alkylthio, $[(C_1-C_4)$ Alkyl]-carbonyl, $[(C_1-C_4)$ Alkoxy]-carbonyl oder $[(C_1-C_4)$ Alkylthio]-carbonyl, wobei die kohlenwasserstoffhaltigen Teile in den letztgenannten 9 Resten unsubstituiert oder substituiert sind,

- n 0, 1, 2, 3, 4 oder 5, vorzugsweise 0, 1, 2, 3 oder 4, insbesondere 2 oder 3,
- B^0,B^1,B^2 jeweils unabhängig voneinander eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel -O-, -S(O) $_p$ -, -S(O) $_p$ -, -O-S(O) $_p$ -, -CO-, -O-CO-, -CO-O-, -S-CO-, -CO-S-, -S-CS-, -CS-S-, -O-CO-O-, -NR'-, -O-NR'-, -NR'-O-, -NR'-CO-, -CO-NR'-, -O-CO-NR'-, -NR'-CO-O- oder -NR'-CO-NR''-, wobei p=0, 1 oder 2 ist und R' und R'' unabhängig voneinander Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 6 C-Atomen, Phenyl, Benzyl, Cycloalkyl mit 3 bis 6 C-Atomen oder Alkanoyl mit 1 bis 6 C-Atomen sind,

WO 97/08156 PCT/EP96/03442

5

Y¹,Y² jeweils unabhängig voneinander H oder einen acyclischen
Kohlenwasserstoffrest, beispielsweise mit 1 bis 20 C-Atomen,
vorzugsweise mit 1 bis 10 C-Atomen, oder einen cyclischen
Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 8 C-Atomen, vorzugsweise 3 bis 6 CAtomen, oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 9 Ringatomen und 1
bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der drei
letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist,

bedeuten.

Die Verbindungen der Formel (I) können durch Anlagerung einer geeigneten anorganischen oder organischen Säure, wie beispielsweise HCI, HBr, H₂SO₄ oder HNO₃, aber auch Oxalsäure oder Sulfonsäuren an eine basische Gruppe, wie z.B. Amino oder Alkylamino, Salze bilden. Geeignete Substituenten, die in deprotonierter Form, wie z.B. Sulfonsäuren oder Carbonsäuren, vorliegen, können innere Salze mit ihrerseits protonierbaren Gruppen, wie Aminogruppen bilden. Salze können ebenfalls dadurch gebildet werden, daß bei geeigneten Substituenten, wie z.B. Sulfonsäuren oder Carbonsäuren, der Wasserstoff durch ein für die Landwirtschaft geeignetes Kation ersetzt wird. Diese Salze sind beispielsweise Metallsalze, insbesondere Alkalimetallsalze oder Erdalkalimetallsalze, insbesondere Natrium- und Kaliumsalze, oder auch Ammoniumsalze oder Salze mit organischen Aminen.

In Formel (I) und allen nachfolgenden Formeln können die Reste Alkyl, Alkoxy, Haloalkyl, Haloalkoxy, Alkylamino und Alkylthio sowie die entsprechenden ungesättigten und/oder substituierten Reste im Kohlenstoffgerüst jeweils geradkettig oder verzweigt sein. Wenn nicht speziell angegeben, sind bei diesen Resten die niederen Kohlenstoffgerüste, z.B. mit 1 bis 6 C-Atomen bzw. bei ungesättigten Gruppen mit 2 bis 6 C-Atomen, bevorzugt. Alkylreste, auch in den zusammengesetzten Bedeutungen wie Alkoxy, Haloalkyl usw., bedeuten z.B. Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, t- oder 2-Butyl, Pentyle, Hexyle, wie n-Hexyl, i-Hexyl und 1,3-Dimethylbutyl, Heptyle, wie n-Heptyl, 1-Methylhexyl

und 1,4-Dimethylpentyl; Alkenyl- und Alkinylreste haben die Bedeutung der den Alkylresten entsprechenden möglichen ungesättigten Reste; Alkenyl bedeutet z.B. Allyl, 1-Methylprop-2-en-1-yl, 2-Methyl-prop-2-en-1-yl, But-2-en-1-yl, But-3-en-1-yl, 1-Methyl-but-3-en-1-yl und 1-Methyl-but-2-en-1-yl; Alkinyl bedeutet z.B. Propargyl, But-2-in-1-yl, But-3-in-1-yl, 1-Methyl-but-3-in-1-yl.

Cycloalkyl bedeutet ein carbocyclisches, gesättigtes Ringsystem mit vorzugsweise 3-8 C-Atomen, z.B. Cyclopropyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl.

Halogen bedeutet beispielsweise Fluor, Chlor, Brom oder Iod. Haloalkyl, -alkenyl und -alkinyl bedeuten durch Halogen, vorzugsweise durch Fluor, Chlor und/oder Brom, insbesondere durch Fluor oder Chlor, teilweise oder vollständig substituiertes Alkyl, Alkenyl bzw. Alkinyl, z.B. Monohaloalkyl (= Monohalogenalkyl), Perhaloalkyl, CF₃, CHF₂, CH₂F, CF₃CF₂, CH₂FCHCl, CCl₃, CHCl₂, CH₂Cl; Haloalkoxy ist z.B. OCF₃, OCHF₂, OCH₂F, CF₃CF₂O, OCH₂CF₃ und OCH₂CH₂Cl; entsprechendes gilt für Haloalkenyl und andere durch Halogen substituierte Reste.

Ein Kohlenwasserstoffrest ist ein geradkettiger, verzweigter oder cyclischer und gesättigter oder ungesättigter aliphatischer oder aromatischer Kohlenwasserstoffrest, z.B. Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Cycloalkyl, Cycloalkenyl oder Aryl; Aryl bedeutet dabei ein mono-, bi- oder polycyclisches aromatisches System, beispielsweise Phenyl, Naphthyl, Tetrahydronaphthyl, Indenyl, Indanyl, Pentalenyl, Fluorenyl und ähnliches, vorzugsweise Phenyl; vorzugsweise bedeutet ein Kohlenwasserstoffrest Alkyl, Alkenyl oder Alkinyl mit bis zu 12 C-Atomen oder Cycloalkyl mit 3, 4, 5, 6 oder 7 Ringatomen oder Phenyl; entsprechendes gilt für einen Kohlenwasserstoffrest in einem Kohlenwasserstoffoxyrest.

Ein heterocyclischer Rest oder Ring (Heterocyclyl) kann gesättigt, ungesättigt oder heteroaromatisch sein; er enthält vorzugsweise ein oder mehrere

Heteroeinheiten im Ring, d.h. Heteroatome oder Ringglieder, welche auch substituierte Heteroatome einschließen, vorzugsweise aus der Gruppe N, O, S, SO, SO₂; vorzugsweise ist er ein aliphatischer Heterocyclylrest mit 3 bis 7 Ringatomen oder ein heteroaromatischer Rest mit 5 oder 6 Ringatomen und enthält 1, 2 oder 3 Heteroeinheiten. Der heterocyclische Rest kann z.B. ein heteroaromatischer Rest oder Ring (Heteroaryl) sein, wie z.B. ein mono-, bioder polycyclisches aromatisches System, in dem mindestens 1 Ring ein oder mehrere Heteroatome enthält, beispielsweise Pyridyl, Pyrimidinyl, Pyridazinyl, Pyrazinyl, Thienyl, Thiazolyl, Oxazolyl, Furyl, Pyrrolyl, Pyrazolyl und Imidazolyl, oder ist ein partiell oder vollständig hydrierter Rest wie Oxiranyl, Pyrrolidyl, Piperidyl, Piperazinyl, Dioxolanyl, Morpholinyl, Tetrahydrofuryl. Als Substituenten für einen substituierten heterocyclischen Rest kommen die weiter unten genannten Substituenten in Frage, zusätzlich auch Oxo. Die Oxogruppe kann auch an den Heteroringatomen, die in verschiedenen Oxidationsstufen existieren können, z.B. bei N und S, auftreten.

Substituierte Reste, wie substituierte Kohlenwasserstoffreste, z.B. substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Aryl, Phenyl und Benzyl, oder substituiertes Heterocyclyl oder Heteroaryl, bedeuten beispielsweise einen vom unsubstituierten Grundkörper abgeleiteten substituierten Rest, wobei die Substituenten beispielsweise einen oder mehrere, vorzugsweise 1, 2 oder 3 Reste aus der Gruppe Halogen, Alkoxy, Haloalkoxy, Alkylthio, Hydroxy, Amino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Dialkylaminocarbonyl, substituiertes Amino, wie Acylamino, Mono- und Dialkylamino, und Alkylsulfinyl, Haloalkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch Alkyl und Haloalkyl bedeuten; im Begriff "substituierte Reste" wie substituiertes Alkyl etc. sind als Substituenten zusätzlich zu den genannten gesättigten kohlenwasserstoffhaltigen Resten entsprechende ungesättigte aliphatische und aromatische Reste, wie gegebenenfalls substituiertes Alkenyl, Alkinyl, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Phenyl, Phenoxy etc. eingeschlossen. Bei Resten mit

C-Atomen sind solche mit 1 bis 4 C-Atomen, insbesondere 1 oder 2 C-Atomen, bevorzugt. Bevorzugt sind in der Regel Substituenten aus der Gruppe Halogen, z.B. Fluor und Chlor, (C_1-C_4) Alkyl, vorzugsweise Methyl oder Ethyl, (C_1-C_4) Haloalkyl, vorzugsweise Trifluormethyl, (C_1-C_4) Alkoxy, vorzugsweise Methoxy oder Ethoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, Nitro und Cyano. Besonders bevorzugt sind dabei die Substituenten Methyl, Methoxy und Chlor.

Mono- oder disubstituiertes Amino bedeutet einen chemisch stabilen Rest aus der Gruppe der substituierten Aminoreste, welche beispielsweise durch einen bzw. zwei gleiche oder verschiedene Reste aus der Gruppe Alkyl, Alkoxy, Acyl und Aryl N-substituiert sind; vorzugsweise Monoalkylamino, Dialkylamino, Acylamino, Arylamino, N-Alkyl-N-arylamino sowie N-Heterocyclen; dabei sind Alkylreste mit 1 bis 4 C-Atomen bevorzugt; Aryl ist dabei vorzugsweise Phenyl oder substituiertes Phenyl; für Acyl gilt dabei die weiter unten genannte Definition, vorzugsweise (C₁-C₄)Alkanoyl. Entsprechenes gilt für substituiertes Hydroxylamino oder Hydrazino.

Gegebenenfalls substituiertes Phenyl ist vorzugsweise Phenyl, das unsubstituiert oder ein- oder mehrfach, vorzugsweise bis zu dreifach durch gleiche oder verschiedene Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Halogenalkyl, (C_1-C_4) Halogenalkoxy und Nitro substituiert ist, z.B. o-, m- und p-Tolyl, Dimethylphenyle, 2-, 3- und 4-Chlorphenyl, 2-, 3- und 4-Trifluor- und -Trichlorphenyl, 2,4-, 3,5-, 2,5- und 2,3-Dichlorphenyl, o-, m- und p-Methoxyphenyl.

Ein Acylrest bedeutet den Rest einer organischen Säure, z.B. den Rest einer Carbonsäure und Reste davon abgeleiteter Säuren wie der Thiocarbonsäure, gegebenenfalls N-substituierten Iminocarbonsäuren oder den Rest von Kohlensäuremonoestern, gegebenenfalls N-substituierter Carbaminsäure, Sulfonsäuren, Sulfinsäuren, Phosphonsäuren, Phosphinsäuren. Acyl bedeutet beispielsweise Formyl, Alkylcarbonyl wie [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl,

Phenylcarbonyl, Alkyloxycarbonyl, Phenyloxycarbonyl, Benzyloxycarbonyl, Alkylsulfonyl, Alkylsulfinyl, N-Alkyl-1-iminoalkyl und andere Reste von organischen Säuren. Dabei können die Reste jeweils im Alkyl- oder Phenylteil noch weiter substituiert sein, beispielsweise im Alkylteil durch ein oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Alkoxy, Phenyl und Phenoxy; Beispiele für Substituenten im Phenylteil sind die bereits weiter oben allgemein für substituiertes Phenyl erwähnten Substituenten.

Gegenstand der Erfindung sind auch alle Stereoisomeren, die von Formel (I) umfaßt sind, und deren Gemische. Solche Verbindungen der Formel (I) enthalten ein oder mehrere asymmetrische C-Atome oder auch Doppelbindungen, die in der allgemeinen Formel (I) nicht gesondert angegeben sind. Die durch ihre spezifische Raumform definierten möglichen Stereoisomeren, wie Enantiomere, Diastereomere, Z- und E-Isomere sind alle von der Formel (I) umfaßt und können nach üblichen Methoden aus Gemischen der Stereoisomeren erhalten oder auch durch stereoselektive Reaktionen in Kombination mit dem Einsatz von stereochemisch reinen Ausgangsstoffen hergestellt werden.

Vor allem aus den Gründen der höheren herbiziden Wirkung, besseren Selektivität und/oder besseren Herstellbarkeit sind erfindungsgemäße Verbindungen der genannten Formel (I) oder deren Salze von besonderem Interesse, worin

 R^1 (C₁-C₄)Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C_3-C_9) Cycloalkyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, Amino, Mono- und Di[(C_1-C_4) alkyl]amino, (C_1-C_4) Alkanoylamino,

Benzoylamino, Nitro, Cyano, $[(C_1-C_4)Alkyl]$ carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1-C_4)alkyl]$ aminocarbonyl und $(C_1-C_4)Alkyl$ sulfonyl substituiert ist, und Heterocyclyl mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Ring unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, $(C_1-C_4)Alkyl$ und Oxo substituiert ist,

substituiert ist,

oder Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert,

jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino oder Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclyloxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkinyl, (C2-C4)Alkenyloxy, (C2-C4)Alkinyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, $[(C_1-C_4)Alkoxy]$ -carbonyl, $[(C_1-C_4)Alkyl]$ -carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C_1 - C_4)alkyl]-aminocarbonyl, (C_1 - C_4)Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C_1-C_4) Alkyl und (C_1-C_4) Haloalkyl substituiert ist.

oder einen Acylrest oder

R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N, O und S ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe

Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,

- R^4 Wasserstoff, Amino, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclyloxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkinyl, (C_2-C_4) Alkenyloxy, (C2-C4)Alkinyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, $[(C_1-C_4)Alkoxy]$ -carbonyl, $[(C_1-C_4)Alkyl]$ carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C1-C4)alkyl]-aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C_1-C_4) Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist, oder einen Acylrest,
- R⁵ Wasserstoff, Halogen oder einen Rest der Formel -B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie unten definiert sind,
- A einen divalenten Rest der Formel A¹, A², A³ oder A⁴

R⁶,R⁷,R⁸,R⁹,R¹⁰,R¹¹,R¹²,R¹³, R¹⁴, R¹⁵, R¹⁶, R¹⁷, R¹⁸, R¹⁹ jeweils unabhängig voneinander Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato oder einen Rest der Formel -B²-Y².

(X)_n n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, OH, NH₂, NO₂, CHO, COOH, CN, SCN oder einen Rest der Formel -B°-R, wobei B° wie unten definiert ist und R (C_1 - C_6)Alkyl, (C_2 - C_6)Alkenyl oder (C_2 - C_6)Alkinyl, wobei jeder der 3 letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist, bedeutet, oder einen Rest der Formel -B°-R°, wobei B° wie unten definiert ist und R° (C_3 - C_6)Cycloalkyl, (C_3 - C_6)Cycloalkenyl oder Phenyl bedeutet, wobei jeder der letztgenannten drei Reste unsubstituiert oder substituiert ist, vorzugsweise durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1 - C_4)Alkyl, (C_1 - C_4)Haloalkyl und (C_1 - C_4)Alkoxy substituiert ist, oder

zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

vorzugsweise X jeweils unabhängig voneinander Halogen, $(C_1\text{-}C_6)\text{Alkyl}, \ (C_1\text{-}C_6)\text{Alkoxy}, \ (C_1\text{-}C_4)\text{Alkylcarbonyl}, \\ (C_1\text{-}C_4)\text{Alkyloxycarbonyl oder } (C_1\text{-}C_4)\text{Alkylthiocarbonyl}, \ \text{wobei die letztgenannten fünf Reste unsubstituiert oder durch Halogen oder } (C_1\text{-}C_4)\text{Alkoxy substituiert sind},$

- n 0, 1, 2, 3 oder 4, vorzugsweise 2 oder 3,
- B^o,B¹,B² jeweils unabhängig voneinander eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel

-O-, -S-, -CO-, -O-CO-, -CO-O-, -S-CO-, -CO-S-, -O-CO-O-, -NR'-, -NR'-CO-, -CO-NR'-, -O-CO-NR'-, -NR'-CO-O- oder -NR'CONR''-, wobei R' und R'' unabhängig voneinander H oder (C₁-C₄)Alkyl sind,

Y¹,Y² jeweils unabhängig voneinander H oder einen acyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 C-Atomen, einen cyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 6 C-Atomen oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 9 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der drei letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkinyl, (C_2-C_4) Alkenyloxy, (C_2-C_4) Alkinyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, $[(C_1-C_4)$ Alkoxy]-carbonyl, $[(C_1-C_4)$ Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1-C_4)$ alkyl]-aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C_1-C_4) Alkylund (C_1-C_4) Haloalkyl substituiert ist,

bedeuten.

Von besonderem Interesse sind weiterhin erfindungsgemäße Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, worin

 R^1 (C₁-C₄)Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_3-C_6) Cycloalkyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) -Alkoxy und (C_1-C_4) Haloalkoxy substituiert ist, und Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, Nitro, Cyano, (C_1-C_4) Alkylcarbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- (C_1-C_2) Alkylcarbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- (C_1-C_2) Alkylcarbonyl und (C_1-C_4) Alkylsulfonyl substituiert ist, substituiert ist, oder

Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, Nitro, Cyano, $[(C_1-C_2)$ Alkyl]carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1-C_2)$ Alkyl]aminocarbonyl und (C_1-C_4) Alkylsulfonyl substituiert ist,

 R^2 und R^3 unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl, $(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{Alkyl}$, $\mathsf{Cyano}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}$, $(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{Alkylamino}$, $\mathsf{Di}\mathsf{-}[(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}]\mathsf{-}\mathsf{amino}$, $\mathsf{Halo}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}$, $\mathsf{Hydroxy}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}$, $(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{Alkoxy}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}$, $\mathsf{Halo}\mathsf{-}(\mathsf{C}_2\mathsf{-}\mathsf{C}_6)\mathsf{Alkenyl}$, $\mathsf{Halo}\mathsf{-}(\mathsf{C}_2\mathsf{-}\mathsf{C}_6)\mathsf{Alkenyl}$, $\mathsf{Halo}\mathsf{-}(\mathsf{C}_2\mathsf{-}\mathsf{C}_6)\mathsf{Alkinyl}$, $\mathsf{Halo}\mathsf{-}(\mathsf{C}_2\mathsf{-}\mathsf{C}_6)\mathsf{alkinyl}$, $(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}\mathsf{amino}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}$, $\mathsf{Di}\mathsf{-}[(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}\mathsf{-}\mathsf{amino}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}$, $(\mathsf{C}_3\mathsf{-}\mathsf{C}_9)\mathsf{Cycloalkyl}\mathsf{-}\mathsf{amino}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}$, $(\mathsf{C}_3\mathsf{-}\mathsf{C}_9)\mathsf{Cycloalkyl}$, $(\mathsf{C}_3\mathsf{-}\mathsf{C}_9)\mathsf{Cycloalkyl}$, $(\mathsf{C}_3\mathsf{-}\mathsf{C}_9)\mathsf{Heterocyclyl}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}$ mit 3 bis 9 Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste, vorzugsweise bis zu drei Reste, aus der Gruppe $(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{Alkyl}$, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenylcarbonyl- $(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}$,

Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenylcarbonyl- (C_1-C_4) alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl- (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, Phenoxy- (C_1-C_4) Alkyl, Phenyl- (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, Heterocyclylamino, Heterocyclyloxy, Heterocyclylthio, oder einen der letztgenannten 16 Reste, der im acyclischen Teil oder, vorzugsweise, im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) Haloalkoxy, Formyl, (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl, (C_1-C_4) Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält, oder

 R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N, O und S ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

enthält,

 R^4 Wasserstoff, Amino, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl, Cyano-(C₁-C₄)alkyl, (C_1-C_4) Alkylamino, Di- $[(C_1-C_4)$ alkyl]-amino, Halo- (C_1-C_4) alkyl, Hydroxy- (C_1-C_4) alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy- (C_1-C_4) alkyl, Halo(C₁-C₄)alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl, Halo-(C₂-C₆)Alkenyl, (C_2-C_6) Alkinyl, Halo- (C_2-C_6) alkinyl, (C_1-C_4) Alkylamino- (C_1-C_4) alkyl, $Di-[(C_1-C_4)alkyl]-amino-(C_1-C_4)alkyl, (C_3-C_9)Cycloalkylamino-(C_1-C_4)alkyl,$ (C₃-C₉)Cycloalkyl, (C₃-C₉)Heterocyclyl-(C₁-C₄)alkyl mit 3 bis 9 Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste, vorzugsweise bis zu drei Reste, aus der Gruppe (C1-C4)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenylcarbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl-(C₁-C₄)alkyl, (C₁-C₄)Alkylamino-carbonyl- (C_1-C_4) alkyl, (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylamino-carbonyl, Phenoxy- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocyclyloxy, Heterocyclylthio, oder einen der letztgenannten 16 Reste, der im acyclischen Teil oder, vorzugsweise, im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C₁-C₄)Alkyl, $(C_1-C_4)Alkoxy$, $(C_1-C_4)AlkyIthio$, $(C_1-C_4)HaloalkyI$, $(C_1-C_4)Haloalkoxy$, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl, (C₁-C₄)Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S

- R^5 Wasserstoff, $(C_1-C_4)Alkyl$, $(C_1-C_4)Halogenalkyl$ oder $(C_3-C_6)Cycloalkyl$,
- A einen divalenten Rest der genannten Formel A^1 , A^2 , A^3 oder A^4 ,
- R^6 , R^7 , R^8 , R^9 , R^{10} , R^{11} , R^{12} , R^{13} , R^{14} , R^{15} , R^{16} , R^{17} , R^{18} , R^{19} jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, (C₁-C₈)Alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl, (C₂-C₆)Alkinyl, (C₃-C₉)Cycloalkyl, (C₃-C₉)Cycloalkenyl, Phenyl, Heterocyclyl

mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der letztgenannten 7 Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, Amino, Mono- und Di[(C_1-C_4) Alkyl]amino, (C_1-C_4) Alkanoylamino, Benzoylamino, Nitro, Cyano, [(C_1-C_4) Alkyl]carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C_1-C_4) Alkyl]aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl und, im Fall cyclischer Reste, auch (C_1-C_4) Alkyl und (C_1-C_4) Haloalkyl substituiert ist, n Substituenten X und dahei X jeweils unabhängig vensingedes Haloace

 $(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, Amino, Nitro, Formyl, Carboxy, Cyano, Thiocyanato, $(C_1-C_4)Alkyl$, Cyano- $(C_1-C_4)alkyl$, $(C_1-C_4)Alkoxy$, $(C_1-C_4)Alkylamino$, Di-[(C_1 - C_4)alkyl]-amino, Halo-(C_1 - C_4)alkyl, Hydroxy-(C_1 - C_4)alkyl, $(C_1-C_4)Alkoxy-(C_1-C_4)alkyl$, $Halo(C_1-C_4)alkoxy-(C_1-C_4)alkyl$, (C_1-C_4) Alkylthio, Halo- (C_1-C_4) alkylthio, (C_2-C_6) Alkenyl, $\label{eq:condition} \mbox{Halo-(C$_2$-C$_6$)Alkenyl, (C$_2$-C$_6$)Alkinyl, Halo-(C$_2$-C$_6$)alkinyl,}$ $(C_1-C_4)Alkylamino-(C_1-C_4)alkyl, Di-[(C_1-C_4)alkyl]-amino-(C_1-C_4)alkyl,$ (C_3-C_9) Cycloalkylamino- (C_1-C_4) alkyl, (C_3-C_9) Cycloalkyl, Heterocyclyl-(C₁-C₄)alkyl mit 3 bis 9 Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste, vorzugsweise bis zu drei Reste, aus der Gruppe (C₁-C₄)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenylcarbonyl-(C₁-C₄)alkyl, $(C_1-C_4)Alkoxy-carbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylamino-carbonyl-(C$ (C_1-C_4) alkyl, (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl, Aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylamino-carbonyl, Phenoxy- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocyclyloxy, Heterocyclylthio oder einen der letztgenannten 16 Reste, der im acyclischen Teil oder, vorzugsweise, im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C1-C4)Alkyl, $(C_1-C_4)Alkoxy$, $(C_1-C_4)Alkylthio$, $(C_1-C_4)Haloalkyl$, $(C_1-C_4)Haloalkoxy$, Formyl, (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl, (C_1-C_4) Alkoxy,

substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält, oder

zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,

bedeuten.

Von besonderem Interesse sind weiterhin erfindungsgemäße Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, worin

- R^1 (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl, Benzyl oder [(C₃-C₆)Cycloalkyl]-(C₁-C₂)alkyl,
- $\rm R^2$ und $\rm R^3$ unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl, $(C_1\text{-}C_4) \text{Alkyl}, \ (C_1\text{-}C_4) \text{Alkoxy-} (C_1\text{-}C_4) \text{alkyl}, \ (C_2\text{-}C_6) \text{Alkenyl}, \ (C_2\text{-}C_6) \text{Alkinyl}, \ (C_1\text{-}C_4) \text{Alkylamino-} (C_1\text{-}C_4) \text{alkyl}, \ \text{Di-}[(C_1\text{-}C_4) \text{alkyl}]\text{-amino-} (C_1\text{-}C_4) \text{alkyl} \ \text{oder}$ Phenyl, Phenyl-(C_1-C_4) alkyl oder Phenoxy-carbonyl oder einen der letztgenannten drei Reste, der im Phenylteil bis zu dreifach durch Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy und (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl substituiert ist, oder
 - R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N und O ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,
- Wasserstoff, Amino, Formyl, (C_1-C_4) Alkyl, Di-[(C_1-C_4) alkyl]-amino, (C_1-C_4) Alkoxy- (C_1-C_4) alkyl, (C_2-C_6) Alkenyl, (C_2-C_6) Alkinyl, (C_1-C_4) Dialkylamino- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl, Phenoxy- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl- (C_1-C_4) alkyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylamino-carbonyl oder einen

- der letztgenannten fünf Reste, der im Phenylteil einfach bis dreifach durch Reste aus der Gruppe Halogen, $(C_1-C_4)Alkyl$, $(C_1-C_4)Alkoxy$ und $(C_1-C_4)Alkoxy$ -carbonyl substituiert ist,
- R⁵ Wasserstoff, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Halogenalkyl oder (C₃-C₆)Cycloalkyl,
- A einen divalenten Rest der genannten Formel A¹, A², A³ oder A⁴,
- R^6 , R^7 , R^8 , R^9 , R^{10} , R^{11} , R^{12} , R^{13} , R^{14} , R^{15} , R^{16} , R^{17} , R^{18} , R^{19} jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen oder (C_1 - C_4) Alkyl, vorzugsweise H oder (C_1 - C_4) Alkyl,
- $(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Alkoxy bedeuten.

Bevorzugte erfindungsgemäße Verbindungen der Formel (I) und deren Salze sind solche, worin

- R¹ (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl oder [(C₃-C₆)Cycloalkyl]-methyl, vorzugsweise -CH₃, -CH₂F, -CHF₂, -CF₃, -CH₂Cl, -CHCl₂, -CCl₃, -CH₂Br, -CHBr₂, -CH₂CH₃, -CH₂CH₂F, -CF₂CHF₂, -CH₂CH₂Cl, -CH₂CH₂Br, -CH(CH₃)₂, -CF(CH₃)₂, -C(CH₃)₂Cl, -CH₂CH₂CH₂F, -CH₂CH₂CH₂Cl der Cyclopropylmethyl, R² und R³ unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl oder (C₁-C₄)Alkyl oder R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 4 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N und 0 ausgewählt ist,
- R^4 Wasserstoff oder (C₁-C₄)Alkyl,
- R^5 H, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Haloalkyl, vorzugsweise H, CH_3 , C_2H_5 , noder i- C_3H_7 , n-Butyl, CF_3 oder CH_2CF_3 , insbesondere CH_3 ,
- A einen divalenten Rest der genannten Formel A^1 , A^2 oder A^3 ,
- $R^6, R^7, R^8, R^9, R^{10}, R^{11}, R^{12}, R^{13}$ jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff oder (C₁-C₄)Alkyl,

 $(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Alkoxy bedeuten.

Bevorzugt sind auch erfindungsgemäße Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, die ein oder mehrere der Merkmale aus den obengenannten bevorzugten Verbindungen enthalten.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind auch Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) oder deren Salze, dadurch gekennzeichnet, daß man

a) eine Verbindung der Formel (II),

$$R^1$$
 - Fu (II)

worin Fu eine funktionelle Gruppe aus der Gruppe Carbonsäureester, Carbonsäureorthoester, Carbonsäurechlorid, Carbonsäureamid, Carbonsäureanhydrid und Trichlormethyl bedeutet, mit einem Biguanidid der Formel (III) oder einem Säureadditionssalz hiervon

umsetzt oder

b) eine Verbindung der Formel (IV),

$$\begin{array}{c|c}
R^{1} \\
N \\
N \\
Z^{1}
\end{array}$$

worin Z^1 einen austauschfähigen Rest oder eine Abgangsgruppe, z.B. Chlor, Trichlormethyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl und unsubstituiertes oder substituiertes Phenyl- (C_1-C_4) alkylsulfonyl oder (C_1-C_4) Alkylphenylsulfonyl, bedeutet, mit einem geeigneten Amin der Formel (V) oder einem Säureadditionssalz hiervon

$$\begin{array}{c}
R^{5} & (X)_{n} \\
\vdots \\
R^{4} - NH - CH - A
\end{array}$$

umsetzt,

wobei in den Formeln (II), (III), (IV) und (V) die Reste R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 , A und X sowie n wie in Formel (I) definiert sind.

Die Umsetzung der Verbindungen der Formeln (II) und (III) erfolgt vorzugsweise basenkatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel, wie z.B. Tetrahydrofuran (THF), Dioxan, Acetonitril, Dimethylformamid (DMF), Methanol und Ethanol, bei Temperaturen zwischen -10 °C und dem Siedepunkt des Lösungsmittel, vorzugsweise bei 20 °C bis 60 °C; falls Säureadditionssalze der Formel (III) verwendet werden, setzt man diese in der Regel mit Hilfe einer Base in situ frei. Als Basen bzw. basische Katalysatoren eignen sich Alkalihydroxide, Alkalihydride, Alkalicarbonate, Alkalialkoholate, Erdalkalihydroxide, Erdalkalihydride, Erdalkalicarbonate oder organische Basen wie Triethylamin oder 1,8-Diazabicylco[5.4.0]undec-7-en (DBU). Die jeweilige Base wird dabei beispielsweise im Bereich von 0,1 bis 3 Moläquivalenten bezogen auf die Verbindung der Formel (III) eingesetzt. Die Verbindung der Formel (II) kann im Verhältnis zur Verbindung der Formel (III) beispielsweise äquimolar oder mit bis zu 2 Moläquvälenten Überschuß eingesetzt werden. Grundsätzlich sind die entsprechenden Verfahren in der Literatur bekannt (vergleiche: Comprehensive Heterocyclic Chemistry, A.R. Katritzky, C.W. Rees, Pergamon Press, Oxford, New York, 1984, Vol.3; Part 2B; ISBN 0-08-030703-5, S.290).

Die Umsetzung der Verbindungen der Formeln (IV) und (V) erfolgt vorzugsweise basenkatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel, wie z.B. THF, Dioxan, Acetonitril, DMF, Methanol und Ethanol, bei Temperaturen zwischen -10 °C und dem Siedepunkt des jeweiligen Lösungsmittels oder Lösungsmittelgemisches, vorzugsweise bei 20 °C bis 60 °C, wobei die Verbindung (V), falls als Säureadditionssalz eingesetzt, gegebenenfalls in situ mit einer Base freigesetzt wird. Als Basen bzw. basische Katalysatoren eignen sich Alkalihydroxide, Alkalihydride, Alkalicarbonate, Alkalialkoholate, Erdalkalihydroxide, Erdalkalihydride, Erdalkalicarbonate oder organische Basen wie Triethylamin oder 1,8-Diazabicyclo[5.4.0]undec-7-en (DBU). Die jeweilige Base wird dabei in der Regel im Bereich von 1 bis 3 Moläquivalenten bezogen auf die Verbindung der Formel (IV) eingesetzt, die Verbindung der Formel (IV) kann beispielsweise äquimolar zur Verbindung der Formel (V) oder mit bis zu 2 Moläquivalenten Überschuß eingesetzt werden. Grundsätzlich sind die entsprechenden Verfahren aus der Literatur bekannt (vgl. Comprehensive Heterocyclic Chemistry, A.R. Katritzky, C.W. Rees, Pergamon Press, Oxford, New York, 1984, Vol.3; Part 2B; ISBN 0-08-030703-5, S. 482).

Die Edukte der Formeln (II), (IV) und (V) sind entweder kommerziell erhältlich oder können nach oder analog literaturbekannten Verfahren hergestellt werden. Die Verbindungen können beispielsweise auch nach einem der nachfolgend beschriebenen Verfahren hergestellt werden.

Die Verbindung der Formel (IV), oder eine direkte Vorstufe davon, läßt sich beispielweise wie folgt herstellen:

 Durch Reaktion einer Verbindung der Formel (II) mit einem Amidino-thioharnstoff-Derivat der Formel (VI),

$$R^{2}R^{3}N-C-NH-C-S-Z^{2}$$
 (VI)

worin Z^2 (C_1 - C_4)-Alkyl oder Phenyl-(C_1 - C_4)-alkyl bedeutet und R^2 und R^3 wie in Formel (I) definiert sind, werden Verbindungen der Formel (IV) erhalten, in denen $Z^1 = -SZ^2$ bedeutet.

2. Durch Umsetzung eines Amidins der Formel (VII) oder eines Säureadditionssalzes davon,

$$H_2 N - C = \begin{pmatrix} R^1 \\ NH \end{pmatrix}$$

worin R¹ wie in Formel (I) definiert ist, mit einem N-Cyanodithioiminocarbonat der Formel (VIII),

$$NC-N=C$$

$$S-Z^{3}$$

$$(VIII)$$

worin Z^3 (C_1 - C_4)-Alkyl oder Phenyl-(C_1 - C_4)-alkyl bedeutet, werden Verbindungen der Formel (IV) erhalten, worin $Z^1 = -S - Z^3$ bedeutet.

- 3. Durch Umsetzung eines Alkali-dicyanamids mit einem Carbonsäurederivat der genannten Formel (II) werden Verbindungen der Formel (IV) erhalten, worin $Z^1 = NH_2$ bedeutet.
- 4. Durch Umsetzung von Trichloracetonitril mit einem Nitril der Formel (IX),

$$R^1$$
 - CN (IX)

worin R¹ wie in Formel (I) definiert ist, werden zunächst Verbindungen der Formel (X),

$$Z \stackrel{R}{\longrightarrow} N \qquad (X)$$

worin Z^1 und Z^4 jeweils CCl_3 bedeuten, erhalten, welche durch nachfolgende Umsetzung mit Verbindungen der Formel HNR 2 R 3 (R 2 und R 3 wie in Formel (I)), zu Verbindungen der Formel (IV), worin $Z^1 = CCl_3$ bedeutet, führen.

Die Umsetzung der Carbonsäurederivate der Formel (II) mit den Amidinothioharnstoff-Derivaten der Formel (VI) erfolgt vorzugsweise basenkatalysiert in einem organischen Lösungsmittel, wie z.B. Aceton, THF, Dioxan, Acetonitril, DMF, Methanol, Ethanol, bei Temperaturen von -10 °C bis zum Siedepunkt des Lösungsmittel, vorzugsweise bei 0 °C bis 20 °C. Die Umsetzung kann aber auch in Wasser oder in wässrigen Lösungsmitttelgemischen mit einem oder mehreren der obengenannten organischen Lösungsmitteln erfolgen. Falls (VI) als Säureadditionssalz eingesetzt wird, kann es gegebenenfalls in situ mit einer Base freigesetzt werden. Als Basen bzw. basische Katalysatoren eignen sich Alkalihydroxide, Alkalihydride, Alkalicarbonate, Alkalialkoholate, Erdalkalihydroxide, Erdalkalihydride, Erdalkalicarbonate oder organische Basen wie Triethylamin oder 1,8-Diazabicylco[5.4.0]undec-7-en (DBU). Die jeweilige Base wird dabei z.B. im Bereich von 1 bis 3 Moläquivalenten bezogen auf die Verbindung der Formel (VI) eingesetzt. Verbindungen der Formeln (II) und (VI) können beispielsweise äquimolar oder mit bis zu 2 Moläquivalenten Überschuß an Verbindung der Formel (II) eingesetzt werden. Grundsätzlich sind die entsprechenden Verfahren literaturbekannt (vergl.: H. Eilingsfeld, H. Scheuermann, Chem. Ber.; 1967, 100, 1874), die entsprechenden Zwischenprodukte der Formel (IV) sind neu.

Die Umsetzung der Amidine der Formel (VII) mit den N-Cyanodithioiminocarbonaten der Formel (VIII) erfolgt vorzugsweise basenkatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel, wie z.B. Acetonitril, DMF, Dimethylacetamid (DMA), N-Methylpyrrolidon (NMP), Methanol und Ethanol, bei Temperaturen von -10 °C bis zum Siedepunkt des

Lösungsmittels, vorzugsweise bei 20 °C bis 80 °C. Falls (VII) als Säureadditionssalz eingesetzt wird, kann es gegebenenfalls in situ mit einer Base freigesetzt werden. Als Basen bzw. basische Katalysatoren eignen sich Alkalihydroxide, Alkalihydride, Alkalicarbonate, Alkalialkoholate, Erdalkalihydroxide, Erdalkalihydride, Erdalkalicarbonate oder organische Basen wie Triethylamin oder 1,8-Diazabicyclo[5.4.0]undec-7-en (DBU). Die jeweilige Base wird dabei z. B. in Bereich von 1 bis 3 Moläquivalenten bezogen auf die Verbindung der Formel (VIII) eingesetzt, Verbindungen der Formel (VIII) und (VIII) können in der Regel äquimolar oder mit 2 Moläquivalenten Überschuß an Verbindung der Formel (II) eingesetzt werden. Grundsätzlich sind die entsprechenden Verfahren literaturbekannt (vergl.: T.A. Riley, W.J. Henney, N.K. Dalley, B.E. Wilson, R.K. Robins; J. Heterocyclic Chem.; 1986, 23 (6), 1706-1714), die entsprechenden Zwischenprodukte der Formel (IV) sind neu.

Die Herstellung von Zwischenprodukten der Formel (X) mit Z¹ = Chlor kann durch Reaktion von Alkali-dicyanamid mit einem Carbonsäurederivat der Formel (II), wobei dann Fu bevorzugt die funktionelle Gruppe Carbonsäurechlorid oder Carbonsäureamid bedeutet, erfolgen. Die Umsetzung der Reaktionskomponenten erfolgt beispielsweise säurekatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel wie z.B. Toluol, Chlorbenzol, chlorierten Kohlenwasserstoffen bei Temperaturen zwischen -10 °C und dem Siedepunkt des Lösungsmittels, vorzugsweise bei 20 °C bis 80 °C, wobei die entstehenden Intermediate in situ mit einem geeigneten Chlorierungsreagenz wie beispielsweise Phosphoroxychlorid chloriert werden können. Geeignete Säuren sind z.B. Halogenwasserstoffsäuren, wie HCl, oder auch Lewis-Säuren, wie z.B. AlCl₃ oder BF₃ (vergl. US-A-5095113, DuPont).

Die Herstellung von Zwischenprodukten der Formel (X) mit Z¹, Z⁴ =
Trihalogenmethyl kann durch Reaktion der entsprechenden
Trihalogenessigsäurenitrile mit einem Carbonsäurenitril der Formel (IX) erfolgen.
Die Umsetzung der Reaktionskomponenten erfolgt beispielsweise

säurekatalysiert in einem inerten organischen Lösungsmittel wie z.B. Toluol, Chlorbenzol, chlorierten Kohlenwasserstoffen bei Temperaturen zwischen -40 °C und dem Siedepunkt des Lösungsmittels, vorzugsweise bei -10 °C bis 30 °C. Geeignete Säuren sind z.B. Halogenwasserstoffsäuren wie HCl oder auch Lewis-Säuren wie z.B. AlCl₃ oder BF₃ (vgl. EP-A-130939, Ciba Geigy).

Zwischenprodukte der Formel (IV), worin $Z^1 = (C_1 - C_4)$ Alkylmercapto oder unsubstituiertes Phenyl- $(C_1 - C_4)$ -alkylmercapto ist, können in einem inerten organischen Lösungsmittel wie z .B. Toluol, Chlorbenzol, chlorierten Kohlenwasserstoffen oder anderen bei Temperaturen zwischen -40 °C und dem Siedepunkt des Lösungsmittel, vorzugsweise bei 20 °C bis 80 °C, mit einem geeigneten Chlorierungsreagenz wie z.B. elementarem Chlor oder Phosporoxychlorid zu reaktionsfähigeren Chlortriazinen der Formel (IV), worin $Z^1 = Cl$ ist, überführt werden (vgl. J.K. Chakrabarti, D.E. Tupper; Tetrahedron 1975, 31(16), 1879-1882).

Zwischenprodukte der Formel (IV), wobei $Z^1 = (C_1 - C_4)$ Alkylmercapto oder unsubstituiertes oder substituiertes Phenyl- $(C_1 - C_4)$ -alkylmercapto oder $(C_1 - C_4)$ Alkyl-phenylthio ist, können in einem geeigneten Lösungsmittel wie z.B. chlorierten Kohlenwasserstoffen, Essigsäure, Wasser, Alkoholen, Aceton oder Mischungen hiervon bei Temperaturen zwischen 0 °C und dem Siedepunkt des Lösungsmittels, vorzugsweise von 20 °C bis 80 °C, mit einem geeigneten Oxidationssreagenz wie z.B. m-Chlorperbenzoesäure, Wasserstoffperoxid, Kaliumperoxomonosulfat oxidiert werden (vergl.: T.A. Riley, W.J. Henney, N.K. Dalley, B.E. Wilson, R.K. Robins; J. Heterocyclic Chem.; 1986, 23 (6), 1706-1714).

Zur Herstellung der Säureadditionssalze der Verbindungen der Formel (I) kommen folgende Säuren in Frage: Halogenwasserstoffsäuren wie Chlorwasserstoffsäure oder Bromwasserstoffsäure, weiterhin Phosphorsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure, mono- oder bifunktionelle Carbonsäuren und

Hydroxycarbonsäuren wie Essigsäure, Maleinsäure, Bernsteinsäure, Fumarsäure, Weinsäure, Citronensäure, Salicylsäure, Sorbinsäure oder Milchsäure, sowie Sulfonsäuren wie p-Toluolsulfonsäure oder 1,5-Naphtalindisulfonsäure. Die Säureadditionsverbindungen der Formel (I) können in einfacher Weise nach den üblichen Salzbildungsmethoden, z.B. durch Lösen einer Verbindung der Formel (I) in einem geeigneten organischen Lösungsmittel wie z.B. Methanol, Aceton, Methylenchlorid oder Benzin und Hinzufügen der Säure bei Temperaturen von 0 bis 100 °C erhalten werden und in bekannter Weise, z.B. durch Abfiltrieren, isoliert und gegebenfalls durch Waschen mit einem inerten organischen Lösemittel gereinigt werden.

Die Basenadditionssalze der Verbindungen der Formel (I) werden vorzugsweise in inerten polaren Lösungsmitteln wie z.B. Wasser, Methanol oder Aceton bei Temperaturen von 0 bis 100 °C hergestellt. Geeignete Basen zur Herstellung der erfindungsgemäßen Salze sind beispielsweise Alkalicarbonate, wie Kaliumcarbonat, Alkali- und Erdalkalihydroxide, z.B. NaOH oder KOH, Alkali- und Erdalkalihydride, z.B. NaH, Alkali- und Erdalalkoholate, z.B. Natriummethanolat, Kalium-tert.Butylat, oder Ammoniak oder Ethanolamin.

Mit den in den vorstehenden Verfahrensvarianten bezeichneten "inerten Lösungsmitteln" sind jeweils Lösungsmittel gemeint, die unter den jeweiligen Reaktionsbedingungen inert sind, jedoch nicht unter beliebigen Reaktionsbedingungen inert sein müssen.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) und deren Salze, im folgenden zusammen als (erfindungsgemäße) Verbindungen der Formel (I) bezeichnet, weisen eine ausgezeichnete herbizide Wirksamkeit gegen ein breites Spektrum wirtschaftlich wichtiger mono- und dikotyler Schadpflanzen auf. Auch schwer bekämpfbare perennierende Unkräuter, die aus Rhizomen, Wurzelstöcken oder anderen Dauerorganen austreiben, werden durch die Wirkstoffe gut erfaßt. Dabei ist es gleichgültig, ob die Substanzen im Vorsaat-,

Vorauflauf- oder Nachauflaufverfahren ausgebracht werden.

Im einzelnen seien beispielhaft einige Vertreter der mono- und dikotylen Unkrautflora genannt, die durch die erfindungsgemäßen Verbindungen kontrolliert werden können, ohne daß durch die Nennung eine Beschränkung auf bestimmte Arten erfolgen soll.

Auf der Seite der monokotylen Unkrautarten werden z.B. Avena, Lolium, Alopecurus, Phalaris, Echinochloa, Digitaria, Setaria sowie Cyperusarten aus der annuellen Gruppe und auf seiten der perennierenden Spezies Agropyron, Cynodon, Imperata sowie Sorghum und auch ausdauernde Cyperusarten gut erfaßt.

Bei dikotylen Unkrautarten erstreckt sich das Wirkungsspektrum auf Arten wie z.B. Galium, Viola, Veronica, Lamium, Stellaria, Amaranthus, Sinapis, Ipomoea, Matricaria, Abutilon und Sida auf der annuellen Seite sowie Convolvulus, Cirsium, Rumex und Artemisia bei den perennierenden Unkräutern.

Unter den spezifischen Kulturbedingungen im Reis vorkommende Unkräuter wie z.B. Sagittaria, Alisma, Eleocharis, Scirpus und Cyperus werden von den erfindungsgemäßen Wirkstoffen ebenfalls hervorragend bekämpft.

Werden die erfindungsgemäßen Verbindungen vor dem Keimen auf die Erdoberfläche appliziert, so wird entweder das Auflaufen der Unkrautkeimlinge vollständig verhindert oder die Unkräuter wachsen bis zum Keimblattstadium heran, stellen jedoch dann ihr Wachstum ein und sterben schließlich nach Ablauf von drei bis vier Wochen vollkommen ab.

Bei Applikation der Wirkstoffe auf die grünen Pflanzenteile im Nachauflaufverfahren tritt ebenfalls sehr rasch nach der Behandlung ein drastischer Wachstumsstop ein und die Unkrautpflanzen bleiben in dem zum Applikationszeitpunkt vorhandenen Wachstumsstadium stehen oder sterben nach einer gewissen Zeit ganz ab, so daß auf diese Weise eine für die

Kulturpflanzen schädliche Unkrautkonkurrenz sehr früh und nachhaltig beseitigt wird.

Obgleich die erfindungsgemäßen Verbindungen eine ausgezeichnete herbizide Aktivität gegenüber mono- und dikotylen Unkräutern aufweisen, werden Kulturpflanzen wirtschaftlich bedeutender Kulturen wie z.B. Weizen, Gerste, Roggen, Reis, Mais, Zuckerrübe, Baumwolle und Soja nur unwesentlich oder gar nicht geschädigt. Die vorliegenden Verbindungen eignen sich aus diesen Gründen sehr gut zur selektiven Bekämpfung von unerwünschtem Pflanzenwuchs in landwirtschaftlichen Nutzpflanzungen.

Darüberninaus weisen die erfindungsgemäßen Substanzen hervorragende wachstumsregulatorische Eigenschaften bei Kulturpflanzen auf. Sie greifen regulierend in den pflanzeneigenen Stoffwechsel ein und können damit zur gezielten Beeinflussung von Pflanzeninhaltsstoffen und zur Ernteerleichterung wie z.B. durch Auslösen von Desikkation und Wuchsstauchung eingesetzt werden. Desweiteren eignen sie sich auch zur generellen Steuerung und Hemmung von unerwünschtem vegetativen Wachstum, ohne dabei die Pflanzen abzutöten. Eine Hemmung des vegetativen Wachstums spielt bei vielen monound dikotylen Kulturen eine große Rolle, da das Lagern hierdurch verringert oder völlig verhindert werden kann.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen können in Form von Spritzpulvern, emulgierbaren Konzentraten, versprühbaren Lösungen, Stäubemitteln oder Granulaten in den üblichen Zubereitungen angewendet werden. Gegenstand der Erfindung sind deshalb auch herbizide und pflanzenwachstumsregulierende Mittel, die Verbindungen der Formel (I) enthalten.

Die Verbindungen der Formel (I) können auf verschiedene Art formuliert werden, je nachdem welche biologischen und/oder chemisch-physikalischen Parameter vorgegeben sind. Als Formulierungsmöglichkeiten kommen

beispielsweise in Frage: Spritzpulver (WP), wasserlösliche Pulver (SP), wasserlösliche Konzentrate, emulgierbare Konzentrate (EC), Emulsionen (EW), wie Öl-in-Wasser- und Wasser-in-Öl-Emulsionen, versprühbare Lösungen, Suspensionskonzentrate (SC), Dispersionen auf Öl- oder Wasserbasis, ölmischbare Lösungen, Kapselsuspensionen (CS), Stäubemittel (DP), Beizmittel, Granulate für die Streu- und Bodenapplikation, Granulate (GR) in Form von Mikro-, Sprüh-, Aufzugs- und Adsorptionsgranulaten, wasserdispergierbare Granulate (WG), wasserlösliche Granulate (SG), ULV-Formulierungen, Mikrokapseln und Wachse.

Diese einzelnen Formulierungstypen sind im Prinzip bekannt und werden beispielsweise beschrieben in: Winnacker-Küchler, "Chemische Technologie", Band 7, C. Hauser Verlag München, 4. Aufl. 1986; Wade van Valkenburg, "Pesticide Formulations", Marcel Dekker, N.Y., 1973; K. Martens, "Spray Drying" Handbook, 3rd Ed. 1979, G. Goodwin Ltd. London.

Die notwendigen Formulierungshilfsmittel wie Inertmaterialien, Tenside,
Lösungsmittel und weitere Zusatzstoffe sind ebenfalls bekannt und werden
beispielsweise beschrieben in: Watkins, "Handbook of Insecticide Dust Diluents
and Carriers", 2nd Ed., Darland Books, Caldwell N.J., H.v. Olphen,
"Introduction to Clay Colloid Chemistry"; 2nd Ed., J. Wiley & Sons, N.Y.; C.
Marsden, "Solvents Guide"; 2nd Ed., Interscience, N.Y. 1963; McCutcheon's
"Detergents and Emulsifiers Annual", MC Publ. Corp., Ridgewood N.J.; Sisley
and Wood, "Encyclopedia of Surface Active Agents", Chem. Publ. Co. Inc.,
N.Y. 1964; Schönfeldt, "Grenzflächenaktive Äthylenoxidaddukte", Wiss.
Verlagsgesell., Stuttgart 1976; Winnacker-Küchler, "Chemische Technologie",
Band 7, C. Hauser Verlag München, 4. Aufl. 1986.

Auf der Basis dieser Formulierungen lassen sich auch Kombinationen mit anderen pestizid wirksamen Stoffen, wie z.B. Insektiziden, Akariziden, Herbiziden, Fungiziden, sowie mit Safenern, Düngemitteln und/oder Wachstumsregulatoren herstellen, z.B. in Form einer Fertigformulierung oder als Tankmix.

Spritzpulver sind in Wasser gleichmäßig dispergierbare Präparate, die neben dem Wirkstoff außer einem Verdünnungs- oder Inertstoff noch Tenside ionischer und/oder nichtionischer Art (Netzmittel, Dispergiermittel), z.B. polyoxyethylierte Alkylphenole, polyoxethylierte Fettalkohole, polyoxethylierte Fettamine, Fettalkoholpolyglykolethersulfate, Alkansulfonate, Alkylbenzolsulfonate, ligninsulfonsaures Natrium, 2,2'-dinaphthylmethan-6,6'-disulfonsaures Natrium, dibutylnaphthalin-sulfonsaures Natrium oder auch oleoylmethyltaurinsaures Natrium enthalten. Zur Herstellung der Spritzpulver werden die herbiziden Wirkstoffe beispielsweise in üblichen Apparaturen wie Hammermühlen, Gebläsemühlen und Luftstrahlmühlen feingemahlen und gleichzeitig oder anschließend mit den Formulierungshilfsmitteln vermischt.

Emulgierbare Konzentrate werden durch Auflösen des Wirkstoffes in einem organischen Lösungsmittel z.B. Butanol, Cyclohexanon, Dimethylformamid, Xylol oder auch höhersiedenden Aromaten oder Kohlenwasserstoffen oder Mischungen der organischen Lösungsmittel unter Zusatz von einem oder mehreren Tensiden ionischer und/oder nichtionischer Art (Emulgatoren) hergestellt. Als Emulgatoren können beispielsweise verwendet werden: Alkylarylsulfonsaure Calzium-Salze wie

Ca-dodecylbenzolsulfonat oder nichtionische Emulgatoren wie Fettsäurepolyglykolester, Alkylarylpolyglykolether, Fettalkoholpolyglykolether, Propylenoxid-Ethylenoxid-Kondensationsprodukte, Alkylpolyether, Sorbitanester wie z.B. Sorbitanfettsäureester oder Polyoxethylensorbitanester wie z.B. Polyoxyethylensorbitanfettsäureester.

Stäubemittel erhält man durch Vermahlen des Wirkstoffes mit fein verteilten festen Stoffen, z.B. Talkum, natürlichen Tonen, wie Kaolin, Bentonit und Pyrophyllit, oder Diatomeenerde.

Suspensionskonzentrate können auf Wasser- oder Ölbasis sein. Sie können beispielsweise durch Naß-Vermahlung mittels handelsüblicher Perlmühlen und gegebenenfalls Zusatz von Tensiden, wie sie z.B. oben bei den anderen Formulierungstypen bereits aufgeführt sind, hergestellt werden.

Emulsionen, z.B. Öl-in-Wasser-Emulsionen (EW), lassen sich beispielsweise mittels Rührern, Kolloidmühlen und/oder statischen Mischern unter Verwendung von wäßrigen organischen Lösungsmitteln und gegebenenfalls Tensiden, wie sie z.B. oben bei den anderen Formulierungstypen bereits aufgeführt sind, herstellen.

Granulate können entweder durch Verdüsen des Wirkstoffes auf adsorptionsfähiges, granuliertes Inertmaterial hergestellt werden oder durch Aufbringen von Wirkstoffkonzentraten mittels Klebemitteln, z.B. Polyvinylalkohol, polyacrylsaurem Natrium oder auch Mineralölen, auf die Oberfläche von Trägerstoffen wie Sand, Kaolinite oder von granuliertem Inertmaterial. Auch können geeignete Wirkstoffe in der für die Herstellung von Düngemittelgranulaten üblichen Weise - gewünschtenfalls in Mischung mit Düngemitteln - granuliert werden.

Wasserdispergierbare Granulate werden in der Regel nach den üblichen Verfahren wie Sprühtrocknung, Wirbelbett-Granulierung, Teller-Granulierung, Mischung mit Hochgeschwindigkeitsmischern und Extrusion ohne festes Inertmaterial hergestellt.

Zur Herstellung von Teller-, Fließbett-, Extruder- und Sprühgranulate siehe z.B. Verfahren in "Spray-Drying Handbook" 3rd ed. 1979, G. Goodwin Ltd., London; J.E. Browning, "Agglomeration", Chemical and Engineering 1967, Seiten 147 ff; "Perry's Chemical Engineer's Handbook", 5th Ed., McGraw-Hill, New York 1973, S. 8-57.

Für weitere Einzelheiten zur Formulierung von Pflanzenschutzmitteln siehe z.B. G.C. Klingman, "Weed Control as a Science", John Wiley and Sons, Inc., New York, 1961, Seiten 81-96 und J.D. Freyer, S.A. Evans, "Weed Control Handbook", 5th Ed., Blackwell Scientific Publications, Oxford, 1968, Seiten 101-103.

Die agrochemischen Zubereitungen enthalten in der Regel 0,1 bis 99 Gew.-%, insbesondere 0,1 bis 95 Gew.-%, Wirkstoff der Formel (I).

In Spritzpulvern beträgt die Wirkstoffkonzentration z.B. etwa 10 bis 90 Gew.-%, der Rest zu 100 Gew.-% besteht aus üblichen

Formulierungsbestandteilen. Bei emulgierbaren Konzentraten kann die

Wirkstoffkonzentration etwa 1 bis 90, vorzugsweise 5 bis 80 Gew.-% betragen.

Staubförmige Formulierungen enthalten 1 bis 30 Gew.-% Wirkstoff,

vorzugsweise meistens 5 bis 20 Gew.-% an Wirkstoff, versprühbare Lösungen

enthalten etwa 0,05 bis 80, vorzugsweise 2 bis 50 Gew.-% Wirkstoff. Bei

wasserdispergierbaren Granulaten hängt der Wirkstoffgehalt zum Teil davon ab,

ob die wirksame Verbindung flüssig oder fest vorliegt und welche

Granulierhilfsmittel, Füllstoffe usw. verwendet werden. Bei den in Wasser

dispergierbaren Granulaten liegt der Gehalt an Wirkstoff beispielsweise

zwischen 1 und 95 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 10 und 80 Gew.-%.

Daneben enthalten die genannten Wirkstofformulierungen gegebenenfalls die jeweils üblichen Haft-, Netz-, Dispergier-, Emulgier-, Penetrations-, Konservierungs-, Frostschutz- und Lösungsmittel, Füll-, Träger- und Farbstoffe, Entschäumer, Verdunstungshemmer und den pH-Wert und die Viskosität beeinflussende Mittel.

Als Kombinationspartner für die erfindungsgemäßen Wirkstoffe in Mischungsformulierungen oder im Tank-Mix sind beispielsweise bekannte Wirkstoffe einsetzbar, wie sie in z.B. Weed Research 26, 441-445 (1986), oder "The Pesticide Manual", 10th edition, The British Crop Protection Council

and the Royal Soc. of Chemistry, 1994 und dort zitierter Literatur beschrieben sind. Als literaturbekannte Herbizide, die mit den Verbindungen der Formel (I) kombiniert werden können, sind z.B. folgende Wirkstoffe zu nennen (Anmerkung: Die Verbindungen sind entweder mit dem "common name" nach der International Organization for Standardization (ISO) oder mit dem chemischen Namen, ggf. zusammen mit einer üblichen Codenummer bezeichnet):

acetochlor; acifluorfen; aclonifen; AKH 7088, d.h. [[[1-[5-[2-Chloro-4-(trifluoromethyl)-phenoxy]-2-nitrophenyl]-2-methoxyethylidene]-amino]-oxy]essigsäure und -essigsäuremethylester; alachlor; alloxydim; ametryn; amidosulfuron; amitrol; AMS, d.h. Ammoniumsulfamat; anilofos; asulam; atrazin; azimsulfurone (DPX-A8947); aziprotryn; barban; BAS 516 H, d.h. 5-Fluor-2-phenyl-4H-3,1-benzoxazin-4-on; benazolin; benfluralin; benfuresate; bensulfuron-methyl; bensulide; bentazone; benzofenap; benzofluor; benzoylprop-ethyl; benzthiazuron; bialaphos; bifenox; bromacil; bromobutide; bromofenoxim; bromoxynil; bromuron; buminafos; busoxinone; butachlor; butamifos; butenachlor; buthidazole; butralin; butylate; cafenstrole (CH-900); carbetamide; cafentrazone (ICI-A0051); CDAA, d.h. 2-Chlor-N,Ndi-2-propenylacetamid; CDEC, d.h. Diethyldithiocarbaminsäure-2-chlorallylester; chlomethoxyfen; chloramben; chlorazifop-butyl, chlormesulon (ICI-A0051); chlorbromuron; chlorbufam; chlorfenac; chlorflurecol-methyl; chloridazon; chlorimuron ethyl; chlornitrofen; chlorotoluron; chloroxuron; chlorpropham; chlorsulfuron; chlorthal-dimethyl; chlorthiamid; cinmethylin; cinosulfuron; clethodim; clodinafop und dessen Esterderivate (z.B. clodinafop-propargyl); clomazone; clomeprop; cloproxydim; clopyralid; cumyluron (JC 940); cyanazine; cycloate; cyclosulfamuron (AC 104); cycloxydim; cycluron; cyhalofop und dessen Esterderivate (z.B. Butylester, DEH-112); cyperquat; cyprazine; cyprazole; daimuron; 2,4-DB; dalapon; desmedipham; desmetryn; di-allate; dicamba; dichlobenil; dichlorprop; diclofop und dessen Ester wie diclofop-methyl; diethatyl; difenoxuron; difenzoquat; diflufenican; dimefuron; dimethachlor; dimethametryn; dimethenamid (SAN-582H); dimethazone,

clomazon; dimethipin; dimetrasulfuron, dinitramine; dinoseb; dinoterb; diphenamid; dipropetryn; diquat; dithiopyr; diuron; DNOC; eglinazine-ethyl; EL 77, d.h. 5-Cyano-1-(1,1-dimethylethyl)-N-methyl-1H-pyrazole-4-carboxamid; endothal; EPTC; esprocarb; ethalfluralin; ethametsulfuron-methyl; ethidimuron; ethiozín; ethofumesate; F5231, d.h. N-[2-Chlor-4-fluor-5-[4-(3-fluorpropyl)-4,5dihydro-5-oxo-1H-tetrazol-1-yl]-phenyl]-ethansulfonamid; ethoxyfen und dessen Ester (z.B. Ethylester, HN-252); etobenzanid (HW 52); fenoprop; fenoxan, fenoxaprop und fenoxaprop-P sowie deren Ester, z.B. fenoxaprop-P-ethyl und fenoxaprop-ethyl; fenoxydim; fenuron; flamprop-methyl; flazasulfuron; fluazifop und fluazifop-P und deren Ester, z.B. fluazifop-butyl und fluazifop-P-butyl; fluchloralin; flumetsulam; flumeturon; flumiclorac und dessen Ester (z.B. Pentylester, S-23031); flumioxazin (S-482); flumipropyn; flupoxam (KNW-739); fluorodifen; fluoroglycofen-ethyl; flupropacil (UBIC-4243); fluridone; flurochloridone; fluroxypyr; flurtamone; fomesafen; fosamine; furyloxyfen; glufosinate; glyphosate; halosafen; halosulfuron und dessen Ester (z.B. Methylester, NC-319); haloxyfop und dessen Ester; haloxyfop-P (= Rhaloxyfop) und dessen Ester; hexazinone; imazamethabenz-methyl; imazapyr; imazaquin und Salze wie das Ammoniumsalz; imazethamethapyr; imazethapyr; imazosulfuron; ioxynil; isocarbamid; isopropalin; isoproturon; isouron; isoxaben; isoxapyrifop; karbutilate; lactofen; lenacil; linuron; MCPA; MCPB; mecoprop; mefenacet; mefluidid; metamitron; metazachlor; methabenzthiazuron; metham; methazole; methoxyphenone; methyldymron; metabenzuron, methobenzuron; metobromuron; metolachlor; metosulam (XRD 511); metoxuron; metribuzin; metsulfuron-methyl; MH; molinate; monalide; monocarbamide dihydrogensulfate; monolinuron; monuron; MT 128, d.h. 6-Chlor-N-(3-chlor-2propenyl)-5-methyl-N-phenyl-3-pyridazinamin; MT 5950, d.h. N-[3-Chlor-4-(1methylethyl)-phenyl]-2-methylpentanamid; naproanilide; napropamide; naptalam; NC 310, d.h. 4-(2,4-dichlorbenzoyl)-1-methyl-5-benzyloxypyrazol; neburon; nicosulfuron; nipyraclophen; nitralin; nitrofen; nitrofluorfen; norflurazon; orbencarb; oryzalin; oxadiargyl (RP-020630); oxadiazon; oxyfluorfen; paraquat; pebulate; pendimethalin; perfluidone; phenisopham; phenmedipham; picloram;

piperophos; piributicarb; pirifenop-butyl; pretilachlor; primisulfuron-methyl; procyazine; prodiamine; profluralin; proglinazine-ethyl; prometon; prometryn; propachlor; propanil; propaquizafop und dessen Ester; propazine; propham; propisochlor; propyzamide; prosulfalin; prosulfocarb; prosulfuron (CGA-152005); prynachlor; pyrazolinate; pyrazon; pyrazosulfuron-ethyl; pyrazoxyfen; pyridate; pyrithiobac (KIH-2031); pyroxofop und dessen Ester (z.B. Propargylester); quinclorac; quinmerac; quinofop und dessen Esterderivate, quizalofop und quizalofop-P und deren Esterderivate z.B. quizalofop-ethyl; quizalofop-P-tefuryl und -ethyl; renriduron; rimsulfuron (DPX-E 9636); S 275, d.h. 2-[4-Chlor-2-fluor-5-(2-propynyloxy)-phenyl]-4,5,6,7tetrahydro-2H-indazol; secbumeton; sethoxydim; siduron; simazine; simetryn; SN 106279, d.h. 2-[[7-[2-Chlor-4-(trifluor-methyl)-phenoxy]-2-naphthalenyl]oxy]-propansäure und -methylester; sulfentrazon (FMC-97285, F-6285); sulfazuron; sulfometuron-methyl; sulfosate (ICI-A0224); TCA; tebutam (GCP-5544); tebuthiuron; terbacil; terbucarb; terbuchlor; terbumeton; terbuthylazine; terbutryn; TFH 450, d.h. N,N-Diethyl-3-[(2-ethyl-6-methylphenyl)-sulfonyl]-1H-1,2,4-triazol-1-carboxamid; thenylchlor (NSK-850); thiazafluron; thizopyr (Mon-13200); thidiazimin (SN-24085); thifensulfuron-methyl; thiobencarb; tiocarbazil; tralkoxydim; tri-allate; triasulfuron; triazofenamide; tribenuron-methyl; triclopyr; tridiphane; trietazine; trifluralin; triflusulfuron und Ester (z.B. Methylester, DPX-66037); trimeturon; tsitodef; vernolate; WL 110547, d.h. 5-Phenoxy-1-[3-(trifluormethyl)-phenyl]-1H-tetrazol; UBH-509; D-489; LS 82-556; KPP-300; NC-324; NC-330; KH-218; DPX-N8189; SC-0774; DOWCO-535; DK-8910; V-53482; PP-600; MBH-001; KIH-9201; ET-751; KIH-6127 und KIH-2023.

Zur Anwendung werden die in handelsüblicher Form vorliegenden Formulierungen gegebenenfalls in üblicher Weise verdünnt z.B. bei Spritzpulvern, emulgierbaren Konzentraten, Dispersionen und wasserdispergierbaren Granulaten mittels Wasser. Staubförmige Zubereitungen, Boden- bzw. Streugranulate sowie versprühbare Lösungen werden vor der Anwendung üblicherweise nicht mehr mit weiteren inerten Stoffen verdünnt.

Mit den äußeren Bedingungen wie Temperatur, Feuchtigkeit, der Art des verwendeten Herbizids, u.a. variiert die erforderliche Aufwandmenge der Verbindungen der Formel (I). Sie kann innerhalb weiter Grenzen schwanken, z.B. zwischen 0,001 und 10,0 kg/ha oder mehr Aktivsubstanz, vorzugsweise liegt sie jedoch zwischen 0,005 und 5 kg/ha.

A. Chemische Beispiele

Beispiel A1

2-Amino-4-(1,1,2,2-tetrafluorethyl)-6-(1-phenyl-3-butylamino)-1,3,5-triazin (siehe Tabelle 1, Beispiel 55)

Zu 6,7 g (0,025 mol) 3-Biguanidino-1-phenyl-butan-hydrochlorid in 50 ml Methanol und 7 g gemahlenem Molekularsieb 3Å fügt man eine aus 1,2 g (0,05 mol) Natrium und 100 ml Methanol hergestellte Methanolatlösung. Danach gibt man 7,2 g (0,045 mol) 1,1,2,2-Tetrafluorpropansäure-methylester hinzu und rührt 2 Stunden bei 25°C und dann 4 Stunden bei 65°C. Die Reaktionsmischung wird filtriert, das Filtrat eingeengt und der Rückstand in Essigester aufgenommen. Es wird mit Wasser gewaschen und mit Natriumsulfat getrocknet. Das Trockenmittel wird abfiltriert und das Lösungsmittel im Vakuum eingedampft. Nach Reinigung mit Säulenchromatographie (Laufmittel: Essigsäureethylester) erhält man 6,95 g (81 % d.Th.) 2-Amino-4-(1,1,2,2-tetrafluorethyl)-6-(1-phenyl-3-butylamino)-1,3,5-triazin.

Beispiel A2

2-Amino-4-isopropyl-6-{1-(4-fluorphenyl)-3-butylamino}-1,3,5-triazin (siehe Tabelle 1, Beispiel 2)

2,6 g (0,015 mol) 2-Amino-4-chlor-6-isopropyl-1,3,5-triazin und 2,1 g (0,015 mol) $\rm K_2CO_3$ werden in 50 ml Acetonitril vorgelegt. Zu dieser Lösung tropft man 2,5 g (0,015 mol) 1-(4-Fluorphenyl)-3-butylamin, gelöst in 20 ml

Acetonitril, hinzu. Anschließend läßt man 3 Stunden am Rückfluß kochen. Danach werden die festen Bestandteile abgesaugt und das Filtrat einrotiert. Der Rückstand wird mittels Säulenchromatographie (Laufmittel: Essigsäureethylester) gereinigt. Ausbeute: 4,1 g (90 % d.Th.).

Die in den nachfolgenden Tabellen 1 und 2 beschriebenen Verbindungen erhält man gemäß oder analog zu den vorstehenden Beispielen A1 und A2. In den Tabellen bedeuten:

Nr.	=	Beispiel oder Beispielnummer
Phys. Daten	=	Charakteristische physikalische Daten der Verbindung
Me	=	Methyl
Et	=	Ethyl
Pr	=	Propyl
i-Pr	=	Isopropyl
c-Pr	=	Cyclopropyl
t-Bu	=	tertiär-Butyl
Ph	=	Phenyl
(X) _n	=	Position und Art des Substituenten am Phenylring
		(Position 1 = Bindung zu A);
		"-" = kein Substituent am Phenylring (n = 0)

Tabelle 1: Verbindungen der Formel (I)

Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	A	(X) _n	Phys. Daten
1	i-Pr	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	•	NMR, siehe
								Ende Tabelle
2	i-Pr	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	4-F	NMR, siehe
_			_					Ende Tabelle
3	i-Pr	Н	Н	Н	Ме	(CH ₂) ₂	2-CI	NMR, siehe
4	i-Pr		-		-			Ende Tabelle
4	11-PT	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	NMR, siehe
5	i-Pr	H	Н	Н	Me	(CU.)	44.5	Ende Tabelle
6	i-Pr	Н	Н	Н		(CH ₂) ₂	4-(t-Bu)	Oel
7	i-Pr		+	·	Me	(CH ₂) ₂	3-J	Oel
		H	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2,5-Me ₂	
8	i-Pr	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2,6-Cl ₂	
9	i-Pr	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2,4,6-Me ₃	Oel
10	i-Pr	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-F ₂	
11	i-Pr	Н	Н	Н	Ме	(CH ₂) ₂	3-Ме	Oel
12	i-Pr	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-CF ₃	
13	i-Pr	Н	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	3-Br	
14	i-Pr	н	н	Н	Me	(CH ₂) ₂	4-Me	
15	t-Bu	Н	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
16	Me	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,4,5-Me ₃	
17	Et	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
18	CH ₂ CH ₂ F	Н	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	2,4,6-Me ₃	
19	CH ₂ CH ₂ CI	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2-Me	·
20	CH ₂ CH ₂ Br	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2-CI	
21	C(CH ₃) ₂ CI	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2-Br	
22	CH ₂ CH ₂ CH ₂ F	Н	н	н	Me	(CH ₂) ₂	2-J	
23	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CI	н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2-CCI ₃	
4	CF ₃	Н	н	н .		(CH ₂) ₂	-	
5	CF ₃	н	Н	Н		(CH ₂) ₂	3,5-F ₂	
6	CF ₃	Н	Н	Н		(CH ₂) ₂	3,5-Cl ₂	
7	CF ₃	н	Н	Н		(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
8	CF ₃	Н	Н	Н		(CH ₂) ₂	3,5-Br ₂	

-					-			<u> </u>
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	A	(X) _n	Phys. Daten
29	CH ₂ F	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	4-Me	
30	CHF ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	4-CI	
31	CH ₂ CI	Н	н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
32	CHCI ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-Ме	
33	CCI ₃	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-CI	
34	CH ₂ Br	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-J	
35	CHBr ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-J	
36	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Ме	(CH ₂) ₂	4-(i-Pr)	
37	CF(CH ₃) ₂	Н	н	Н	Me	(CH ₂) ₂	-	NMR, siehe
								Ende Tabelle
38	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	4-F	NMR, siehe
								Ende Tabelle
39	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Ме	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	NMR, siehe
								Ende Tabelle
40	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	н	Ме	(CH ₂) ₂	4-Me	NMR, siehe
		<u> </u>						Ende Tabelle
41	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2-CI	Oel
42	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	н ·	Ме	(CH ₂) ₂	4-(t-Bu)	
43	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Ме	(CH ₂) ₂	3-J	Oel
44	CF(CH ₃) ₂	н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2,5-Me ₂	·
45	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	2,6-Cl ₂	
46	CF(CH ₃) ₂	н	Н	н	Ме	(CH ₂) ₂	2,4,6-Me ₃	Oel
47	CF(CH ₃) ₂	н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-F ₂	
48_	CF(CH ₃) ₂	Н	н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-Ме	Oel
49	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-CF ₃	Oel
50	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Ме	(CH ₂) ₂	3-Br	
51	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂ ,	
							4-J	
52	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-0Me	
53	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-(OMe) ₂	
54	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	4-0Me	

								.
Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	Α	(X) _n	Phys. Daten
55	CF ₂ CHF ₂	Н	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	-	NMR, siehe
<u></u>								Ende Tabelle
56	CF ₂ CHF ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
57	CF ₂ CHF ₂	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,4,5-Me ₃	
58	CF ₂ CHF ₂	H	. Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-F ₂	
59	CF ₂ CHF ₂	Н	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	2,5-Me ₂	
60	CF ₂ CHF ₂	Н	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	3-Me	
61	CF ₂ CHF ₂	Н	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	3-CF ₃	
62	CF ₂ CF ₃	н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	-	
63	CF ₂ CF ₃	Н	н	Н	Ме	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
64	CF ₂ CF ₃	н	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂ ,	
							4-J	
65	CF ₂ CF ₃	Н	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	4-OMe	
66	CF ₂ CF ₃	Н.	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	4-OEt	
67	i-Pr	NH ₂	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	4-NO ₂	
68	Ме	NH ₂	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	4-CF ₃	
69	CF(CH ₃) ₂	NH ₂	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-0CH ₃	
70	CF(CH ₃) ₂	сно	н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-0C ₂ H ₅	
71	CF ₂ CHF ₂	сно	Н	н	Me	(CH ₂) ₂	2-CN	
72	CH ₂ CH ₂ CI	сно	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	4-J	
73	CF(CH ₃) ₂	Ме	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
74	C(CH ₃) ₂ CI	Ме	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂	-	
75	CF(CH ₃) ₂	Et	н	Н	Ме	(CH ₂) ₂	3,5-F ₂	
76 .	Et	Pr	н	н	Me	(CH ₂) ₂	2,6-Cl ₂	·
77	i-Pr	Ме	Me	Н	Me	(CH ₂) ₂	3-F	
78	i-Pr	Et	Et	Н	Ме	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
79	i-Pr	Н	Н	Me	Me	(CH ₂) ₂		
80	CF(CH ₃) ₂	H.	Н	Ме	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
81	CF ₃	Н	Н	Me	Et	(CH ₂) ₂	3-Me	
82	i-Pr	Н	н	Et	Н	(CH ₂) ₂	2,5-Me ₂	
83	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Et	Ме	(CH ₂) ₂	2,4-Cl ₂	
34	CF ₂ CHF ₂	Н	Н	Br	Me	(CH ₂) ₂	3,5-F ₂	

Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	A	(X) _n	Phys. Daten
 	ļ	-	-		 			rnys. Daten
85	CF ₂ CF ₂ CF ₃	Н	Н	n-C ₄ H ₉	+	(CH ₂) ₂	3-CF ₃	
86	CF(CH ₃) ₂	Н	H	Н	Н	(CH ₂) ₂	-	Oel
87	i-Pr	Н	Н	Н	Н	(CH ₂) ₂	•	Oel
88	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Н	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
89	i-Pr	Н	Н	Н	Н	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
90	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	Et	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
91	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	н	Et	(CH ₂) ₂	•	Oel
92	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	н	n-Pr	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
93	CF(CH ₃) ₂	Н	н	н	n-Pr	(CH ₂) ₂	-	
94	i-Pr	Н	Н	н	Н	(CH ₂) ₃	-	
95	i-Pr	н	н	Н	Н	(CH ₂) ₃	3,5-Me ₂	
96	Ме	Н	Н	Н	Н	(CH ₂) ₃	3,4,5-Me ₃	
97	Et	Н	Н	Н	Н	(CH ₂) ₃	3,5-Me ₂	·
98	Pr	Н	Н	Н	н	(CH ₂) ₃	3,5-Me ₂ ,	
							4-J	
99	CF(CH ₃) ₂	Н	Η٠	Н	Н	(CH ₂) ₃	•	Oel
100	0.2	Н	Н	н	Н	(CH ₂) ₃	3,5-Me ₂	
101	CF(CH ₃) ₂	Н	Н	Н	н	(CH ₂) ₃	4-(t-Bu)	
102	CH ₃	н	н	Н	Me	CHMeCH ₂	3-OH	
103	C ₄ H ₉	Н	Н	н	Ме	CHMeCH ₂	4-0H	
104	t-Bu	Н	Н	Н	Me	CH ₂ CHMe	2-OH	
105	CF2CF2CF3	Н	I	н	Me	CH ₂ CHMe	3-OH	
	CF(CH ₃) ₂	H	Η	Н	Ме	CH ₂	•	Oel
107	CF(CH ₃) ₂	н	Н	н	Me	CH ₂	3,5-Me ₂	Oel
108	CF ₂ CHF ₂	Н	н	Н	Me	CH ₂	4-F	
109	CF ₂ CF ₂ CF ₃	Н	Н	Н	Н	CH ₂	4-F	
110	i-Pr	н	н	н	Me	-CH = CH-	-	Oel
						(E)-Form		
111	i-Pr	Н	Н	Н	Me	-C≡C-	-	
112	i-Pr	Me	Н	Н	Me	CHMeCH ₂	3,5-Me ₂	Oel
113	i-Pr	Ме	н	н	Et	(CH ₂) ₂	• • .	Oel
114	i-Pr	Me	Me	н	Me	CHMeCH ₂		Oel

Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	A	(X) _n	Phys. Daten
115	i-Pr	Me	Me	Н	Et	(CH ₂) ₂		Oei
116	i-Pr	Me	Me	н	Me	(CH ₂) ₂	-	Oel
117	i-Pr	Me	Н	Н	Me	(CH ₂) ₂		Oel .

NMR-Daten zu einzelnen Beispielen:

Zu Beispiel 1: 1 H-NMR (DMSO-d₆): $\delta = 1,10$ (d, 3H); 1,15 (d, 6H); 1,68 (m, 1H); 1,80 (m, 1H); 2,61 (m, 1H); 4,01 (m, 1H); 7,2 (m, 5H)

Zu Beispiel 2: 1 H-NMR (DMSO-d₆): $\delta = 1.09$ (d, 3H); 1,15 (d, 6H); 1,65 (m, 1H); 1,79 (m, 1H); 2,63 (m, 3H); 3,96 (m, 1H); 7,05 (m, 2H); 7,22 (m, 2H)

Zu Beispiel 3: ${}^{1}\text{H-NMR}$ (DMSO-d₆): $\delta = 1,13$ (m, 9H); 1,74 (m, 2H); 8,55 (Septett, 1H); 2,70 (t, 2H); 4,00 (m, 1H); 7,3 (m, 4H)

Zu Beispiel 4: ${}^{1}\text{H-NMR (DCCl}_{3}$): $\delta = 1,22 \text{ (d, 3H); } 1,26 \text{ (d, 6H); } 1,79 \text{ (m, 2H); } 2,29 \text{ (s, 6H); } 2,60 \text{ (m, 3H); } 4,01 \text{ (m, 1H); } 6,78 \text{ (s, 2H); } 6,82 \text{ (s, 1H)}$

Zu Beispiel 37: ${}^{1}\text{H-NMR (CDCl}_{3})$: $\delta = 1,1 \text{ (d, 3H); } 1,6 \text{ (s, 3H); } 1,7 \text{ (s, 3H); } 2,7 \text{ (m, 3H); } 7,2 \text{ (m, 3H)}$

Zu Beispiel 38: ${}^{1}\text{H-NMR} (CDCl_{3})$: $\delta = 1,1 (d, 3H); 1,6 (s, 3H); 1,7 (s, 3H); 2,6 (m, 3H); 4,0 (m, 1H); 6,9 (m, 2H); 7,1 (m, 2H)$

Zu Beispiel 39: 1 H-NMR (CDCl₃): $\delta = 1,2$ (d, 3H); 1,6 (s, 3H); 1,7 (s, 3H); 1,8 (m, 2H); 2,6 (m, 2H); 4,1 (m, 1H); 6,8 (m, 2H); 6,9 (m, 1H)

Zu Beispiel 40: ${}^{1}\text{H-NMR}$ (DMSO-d₆): $\delta = 1,1$ (d, 3H); 1,5 (s, 3H); 1,6 (s, 3H); 1,7 (m, 1H); 1,8 (m, 1H); 2,2 (s, 3H), 4,0 (m, 1H); 7,1 (s, 4H)

Zu Beispiel 55: ${}^{1}H$ -NMR (DMSO-d₆): $\delta = 1,1$ (d, 3H); 1,7 (m, 2H); 2,6 (m, 3H); 4,0 (m, 1H); 6,7 (tt, 1H); 7,2 (m, 5H)

Tabelle 2: Verbindungen der Formel (la)

Nr.	R ¹	R ⁵	A	(X) _n	Phys. Dat.
2-1	CH ₂ -c-Pr	Me	(CH ₂) ₂	-	
2-2	CH ₂ -c-Pr	Et	(CH ₂) ₂	-	
2-3	CH ₂ -c-Pr	Ме	(CH ₂) ₂	3,-5-Me ₂	
2-4	CH ₂ -c-Pr	Et	(CH ₂) ₂	3,-5-Me ₂	
2-5	CH(CH ₃)-c-Pr	Me	(CH ₂) ₂		
2-6	CH ₂ CH ₃ CH ₃	Me	(CH ₂) ₂	3-Jod	
2-7	CH ₂ CH ₃	Me	(CH ₂) ₂	NMe ₂	
2-8	CH ₂ CH ₃	Me	(CH ₂) ₂	3,5-F ₂	
2-9	CH ₂ -3-CF ₃ -C ₆ H ₃	Et	(CH ₂) ₂	3-NMe ₂	
2-10	CH ₂ -3-F-C ₆ H ₄	Et	(CH ₂) ₂	3-NEt ₂	·
2-11	CH ₂ -2,6-F ₂ -C ₆ H ₃	Me	(CH ₂) ₂	3-OPh	
2-12	CH ₂ -2,6-Cl ₂ -C ₆ H ₃	Ме	(CH ₂) ₂	3-SPh	
2-13	Ph	Et	(CH ₂) ₂	· ·	
2-14	2-CH ₃ -C ₆ H ₄	Ме	(CH ₂) ₂	-	Oel
2-15	2-F-C ₆ H ₄	Ме	(CH ₂) ₂	-	Oel
2-16	3-0CH ₃ -C ₆ H ₄	Et	(CH ₂) ₂	-	
2-17	2,4-(CH ₃) ₂ -C ₈ H ₄	i-Pr	(CH ₂) ₂	-	
2-18	3,5-(CH ₃) ₂ -C ₆ H ₃	Me	(CH ₂) ₂	3-Jod	
2-19	CH ₂ -C ₆ H ₄	Me	(CH ₂) ₂	-	

Nr.	R ¹	R ⁵	Α	(X) _n	Phys. Dat.
2-20	CH ₂ -C ₆ H ₄	Me	(CH ₂) ₂	-	
2-21	CH ₂ -C ₆ H ₅	Et	(CH ₂) ₂		
2-22	COH(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	-	Oel
2-23	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	3-CI	Oel
2-24	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
2-25	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	-	
2-26	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	Ме	(CH ₂) ₂	3-Me	
2-27	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	3-Jod	
2-28	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
2-29	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	-	
2-30	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-Me	
2-31	CH(CH ₃)C ₂ H ₅	Me	(CH ₂) ₂	-	
2-32	CH(CH ₃)C ₂ H ₅	Et	(CH ₂) ₂		
2-33	CH(CH ₃)C ₂ H ₅	Et	(CH ₂) ₂	3-Me	
2-34	CBr(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	-	Oel
2-35	C(CH ₃) ₂ OCH ₃	Me	(CH ₂) ₂	-	Oel
2-36	CCI(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂		Oel
2-37	CH(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	3-CI	Oel
2-38	i-Pr	n-Pr	(CH ₂) ₂	_	Oel
2-39	i-Pr	n-Pr	(CH ₂) ₂	3-Me	
2-40	i-Pr	i-Pr	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	
2-41	CFC(CH ₃) ₂	i-Pr	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	Oel
2-42	i-Pr	CF ₃	(CH ₂) ₂	(CH ₂) ₂	
2-43	CF(CH ₃) ₂	CF ₃	(CH ₂) ₂	•	
2-44	i-Pr	CF ₃	(CH ₂) ₂	3-Jod	
2-45	CF(CH ₃) ₂	CF ₃	(CH ₂) ₂	3-F	
2-46	i-Pr	CF ₂ CF ₃	(CH ₂₎₂	-	
2-47	CF(CH ₃) ₂	CF ₂ CF ₃	(CH ₂) ₂	-	
2-48	CH(CH ₃)C ₂ H ₅	CF ₂ CHF ₂	(CH ₂) ₂		
2-49	i-Pr	CH ₂ CCI ₃	(CH ₂) ₂	-	
2-50	СН ₂ СН(СН ₃) ₂	i-Pr	(CH ₂) ₂	•	

Nr.	R ¹	R ⁵	Α	(X) _n	Phys. Dat.
2-51	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	Oel
2-52	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	4-CI	<u> </u>
2-53	i-Pr	Et			Oel
2-54	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	3,5-Me ₂	Oel
2-55	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	3,4-Cl ₂	Oel
2-56	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	3-CF ₃	Oel
2-57	CF(CH ₃) ₂	 	(CH ₂) ₂	3-CH ₃	
2-57		Et	(CH ₂) ₂	4-CI	Oel
2-58	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3,4-Cl ₂	
	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-CF ₃	
2-60	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-CH ₃	
2-61	CHCH ₃ C ₂ H ₅	Et	(CH ₂) ₂	-	
2-62	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	-	
2-63	CF ₂ CHF ₂	Et	(CH ₂) ₂		Oel
2-64	i-Pr	i-Pr	(CH ₂) ₂	-	
2-65	CF(CH ₃) ₂	i-Pr	(CH ₂) ₂	-	
2-66	i-Pr	i-Pr	(CH ₂) ₂	3-Me	
2-67	CF(CH ₃) ₂	i-Pr	(CH ₂) ₂	3-Ме	
2-68	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	i-Pr	(CH ₂) ₂	-	
2-69	i-Pr	Ме	CH(CH ₃)CH ₂	-	Oel
2-70	CF(CH ₃) ₂	Me	CH(CH ₃)CH ₂	-	Oel
2-70a	CF(CH ₃) ₂	Me	CH(CH ₃)CH ₂	3-F	Oel
2-71	i-Pr	Me	CH(CH ₃)CH ₂	3-CF ₃	Oel
2-72	i-Pr	Me	CH(CH ₃)CH ₂	4-Me	Oel
2-73	CF(CH ₃) ₂	Ме	CH(CH ₃)CH ₂	3-CF ₃	Oel
2-74	CF(CH ₃) ₂	Me	CH(CH ₃)CH ₂	4-Me	Oel
2-75	CF(CH ₃) ₂	Ме	CH(CH ₃)CH ₂	3-Me	Oel
2-76	i-Pr	Me	CH(CH ₃)CH ₂	3-Ме	Oel
2-77	CF(CH ₃) ₂	Ме	CH(CH ₃)CH ₂	3,5-Me ₂	Oel
2-78	C(OH)(CH ₃) ₂	Ме	CH ₂	-	Oel
2-79	CFC(CH ₃) ₂	Et	CH ₂	3,5-Me ₂	
2-80	i-Pr	Me	CH ₂	3,5-Me ₂	Oel

Nr.	R ¹	R ⁵	Α	(X) _n	Phys. Dat.
2-81	i-Pr	Me	CH ₂	-	Oel
2-82	CF(CH ₃) ₂	Et	CH ₂	-	
2-83	i-Pr	Me	CH ₂	2,4-Me ₂	Oel
2-84	CCI(CH ₃) ₂	Me	CH ₂	-	Oel
2-85	CF(CH ₃) ₂	Me	CH ₂	2,4-Me ₂	Oel
2-86	CF(CH ₃) ₂	Me	CH ₂	2-Me	
2-87	i-Pr	Me	CH ₂	2-Me	
2-88	CF(CH ₃) ₂	Me	CH ₂	2,3-Me ₂ -4-OCH ₃	
2-89	i-Pr	Me	CH ₂	2,3-Me ₂ -4-OCH ₃	
2-90	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	3-NH ₂	
2-91	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-NH ₂	
2-92	CF(CH ₃) ₂	Ме	(CH ₂) ₂	3-NHCOCH ₃	
2-93	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-NHCOCH ₃	
2-94	CF(CH ₃) ₂	Ме	(CH ₂) ₂	3-NH-COC ₆ H ₅	
2-95	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-NH-COC ₆ H ₅	·
2-96	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	3-NH-CO ₂ CH ₃	
2-97	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-NH-CO ₂ CH ₃	
2-98	CF(CH ₃) ₂	Ме	(CH ₂) ₂	3-NH-CO ₂ C ₂ H ₅	
2-99	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-NH-CO ₂ C ₂ H ₅	
2-100	CF(CH ₃₎₂	Ме	(CH ₂) ₂	3-NH-COCCI ₃	
2-101	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-NH-COCCI ₃	
2-102	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	3-NHMe	
2-103	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-NHMe	
2-104	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	3-NMe ₂	
2-105	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	3-NMe ₂	
2-106	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	3-NH ₂	
2-107	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	3-NH ₂	
2-108	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	3-NHCOCH ₃	
2-109	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	3-NHCOCH ₃	
2-110	i-Pr	Ме	(CH ₂) ₂	3-NHCO ₂ CH ₃	
2-111	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	3-NHCO ₂ CH ₃	

Nr.	R ¹	R ⁵	Α	(X) _n	Phys. Dat.
2-112	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	NHMe	
2-113	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	NHMe	
2-114	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	NHEt	
2-115	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	OCH ₂ C ₆ H ₅	
2-116	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	OCH ₂ C ₆ H ₅	
2-117	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	ОН	
2-118	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	ОН	
2-119	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	ососн _з	
2-120	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	OCOCH ₃	
2-121	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	OCO ₂ CH ₃	
2-122	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₃) ₂	OCO ₂ CH ₃	
2-123	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	OCOC ₆ H ₅	
2-124	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	OCOC ₆ H ₅	
2-125	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	OCONMe ₂	
2-126	CF(CH ₃) ₂	Et	(CH ₂) ₂	OCONMe ₂	
2-127	CF(CH ₃) ₂	Me	(CH ₂) ₂	OCOCI ₃	
2-128	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	OCH ₂ C ₈ H ₅	
2-129	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	OCH ₂ C ₆ H ₅	
2-130	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	ОН	
2-131	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	он	
2-132	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	ососн ₃	
2-133	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	ососн ₃	
2-134	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	OCO ₂ CH ₃	
2-135	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	OCO ₂ CH ₃	
2-136	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	OCOC ₆ H ₅	
2-137	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	OCOC ₈ H ₅	
2-138	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	OCONMe ₂	
2-139	i-Pr	Et	(CH ₂) ₂	OCONMe ₂	
2-140	i-Pr	Me	(CH ₂) ₂	OCOCCI3	

- B. Formulierungsbeispiele
- a) Ein Stäubemittel wird erhalten, indem man 10 Gew.-Teile einer Verbindung der Formel (I) und 90 Gew.-Teile Talkum als Inertstoff mischt und in einer Schlagmühle zerkleinert.
- b) Ein in Wasser leicht dispergierbares, benetzbares Pulver wird erhalten, indem man 25 Gewichtsteile einer Verbindung der Formel (I), 64 Gewichtsteile kaolinhaltigen Quarz als Inertstoff, 10 Gewichtsteile ligninsulfonsaures Kalium und 1 Gew.-Teil oleoylmethyltaurinsaures Natrium als Netz- und Dispergiermittel mischt und in einer Stiftmühle mahlt.
- c) Ein in Wasser leicht dispergierbares Dispersionskonzentrat wird erhalten, indem man 20 Gewichtsteile einer Verbindung der Formel (I) mit 6 Gew.-Teilen Alkylphenolpolyglykolether (®Triton X 207), 3 Gew.-Teilen Isotridecanolpolyglykolether (8 EO) und 71 Gew.-Teilen paraffinischem Mineralöl (Siedebereich z.B. ca. 255 bis über 277°C) mischt und in einer Reibkugelmühle auf eine Feinheit von unter 5 Mikron vermahlt.
- d) Ein emulgierbares Konzentrat wird erhalten aus 15 Gew.-Teilen einer Verbindung der Formel (I), 75 Gew.-Teilen Cyclohexanon als Lösungsmittel und 10 Gew.-Teilen oxethyliertes Nonylphenol als Emulgator.
- e) Ein in Wasser dispergierbares Granulat wird erhalten indem man 75 Gewichtsteile einer Verbindung der Formel (I),
 - 10 " ligninsulfonsaures Calcium,
 - 5 " Natriumlaurylsulfat,
 - 3 " Polyvinylalkohol und
 - 7 " Kaolin

mischt, auf einer Stiftmühle mahlt und das Pulver in einem Wirbelbett durch Aufsprühen von Wasser als Granulierflüssigkeit granuliert.

f) Ein in Wasser dispergierbares Granulat wird auch erhalten, indem man 25 Gewichtsteile einer Verbindung der Formel (I),

5 " 2,2'-dinaphthylmethan-6,6'-disulfonsaures Natrium

2 " oleoyimethyltaurinsaures Natrium,

1 Gewichtsteil Polyvinylalkohol,

17 Gewichtsteile Calciumcarbonat und

50 " Wasser

auf einer Kolloidmühle homogenisiert und vorzerkleinert, anschließend auf einer Perlmühle mahlt und die so erhaltene Suspension in einem Sprühturm mittels einer Einstoffdüse zerstäubt und trocknet.

C. Biologische Beispiele

1. Unkrautwirkung im Vorauflauf

Samen bzw. Rhizomstücke von mono- und dikotylen Unkrautpflanzen werden in Plastiktöpfen in sandiger Lehmerde ausgelegt und mit Erde abgedeckt. Die in Form von benetzbaren Pulvern oder Emulsionskonzentraten formulierten erfindungsgemäßen Verbindungen werden dann als wäßrige Suspension bzw. Emulsion mit einer Wasseraufwandmenge von umgerechnet 600 bis 800 l/ha in unterschiedlichen Dosierungen auf die Oberfläche der Abdeckerde appliziert.

Nach der Behandlung werden die Töpfe im Gewächshaus aufgestellt und unter guten Wachstumsbedingungen für die Unkräuter gehalten. Die optische Bonitur der Pflanzen- bzw. Auflaufschäden erfolgt nach dem Auflaufen der Versuchspflanzen nach einer Versuchszeit von 3 bis 4 Wochen im Vergleich zu unbehandelten Kontrollen. Wie die Testergebnisse zeigen, weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen eine gute herbizide Vorauflaufwirksamkeit gegen ein breites Spektrum von Ungräsern und Unkräutern auf. Beispielsweise zeigen die Beispiele Nr. 1, 2, 3, 4, 6, 11, 37, 38, 39, 40, 41, 43, 48, 49, 55, 91, 99, 106, 2-22, 2-23, 2-34, 2-35, 2-36, 2-37, 2-38, 2-51, 2-69, 2-70 und 2-70a (s. Tabelle 1 und 2) im Test sehr gute herbizide Wirkung gegen Schadpflanzen wie Stellaria media, Lolium multiflorum, Matricaria inodora, Echinochloa crus-galli, Sinapis alba und Avena sativa, im Vorauflaufverfahren bei einer Aufwandmenge von 1,25 kg oder weniger Aktivsubstanz pro Hektar.

2. Unkrautwirkung im Nachauflauf

Samen bzw. Rhizomstücke von mono- und dikotylen Unkräutern werden in Plastiktöpfen in sandigem Lehmboden ausgelegt, mit Erde abgedeckt und im Gewächshaus unter guten Wachstumsbedingungen angezogen. Drei Wochen nach der Aussaat werden die Versuchspflanzen im Dreiblattstadium behandelt.

WO 97/08156 PCT/EP96/03442

51

Die als Spritzpulver bzw. als Emulsionskonzentrate formulierten erfindungsgemäßen Verbindungen werden in verschiedenen Dosierungen mit einer Wasseraufwandmenge von umgerechnet 600 bis 800 l/ha auf die grünen Pflanzenteile gesprüht. Nach ca. 3 bis 4 Wochen Standzeit der Versuchspflanzen im Gewächshaus unter optimalen Wachstumsbedingungen wird die Wirkung der Präparate optisch im Vergleich zu unbehandelten Kontrollen bonitiert. Die erfindungsgemäßen Mittel weisen auch im Nachauflauf eine gute herbizide Wirksamkeit gegen ein breites Spektrum wirtschaftlich wichtiger Ungräser und Unkräuter auf. Beispielsweise zeigen die Beispiele Nr. 1, 2, 3, 4, 5, 37, 38, 39, 40, 41, 43, 48, 49, 99, 106, 2-23, 2-34, 2-36, 2-38, 2-51, 2-69, 2-70 und 2-70a (s. Tabelle 1 und 2) im Test sehr gute herbizide Wirkung gegen Schadpflanzen wie Sinapis alba, Echinochloa crus-galli, Lolium multiflorum, Stellaria media, Matricaria inodora, Cyperus iria und Avena sativa im Nachauflaufverfahren bei einer Aufwandmenge von 1,25 kg und weniger Aktivsubstanz pro Hektar.

3. Wirkung auf Schadpflanzen in Reis

Verpflanzter und gesäter Reis sowie typische Reisunkräuter und -ungräser werden im Gewächshaus bis zum Dreiblattstadium (Echinochloa 1,5-Blatt) unter Paddyreis-Bedingungen (Anstauhöhe des Wassers: 2 - 3 cm) in geschlossenen Plastiktöpfen angezogen. Danach erfolgt die Behandlung mit den erfindungsgemäßen Verbindungen. Hierzu werden die formulierten Wirkstoffe in Wasser suspendiert, gelöst bzw. emulgiert und mittels Gießapplikation in das Anstauwasser der Test-pflanzen in unterschiedlichen Dosierungen ausgebracht. Nach der so durchgeführten Behandlung werden die Versuchspflanzen im Gewächshaus unter optimalen Wachstumsbedingungen aufgestellt und während der gesamten Versuchszeit so gehalten.

Etwa drei Wochen nach der Applikation erfolgt die Auswertung mittels optischer Bonitur der Pflanzenschäden im Vergleich zu unbehandelten Kontrollen. Die erfindungsgemäßen Verbindungen weisen sehr gute herbizide Wirkung gegen Schadpflanzen auf. Beispielsweise zeigen die Verbindungen der Beispiele Nr. 1, 2, 4, 6, 11, 38, 39, 43, 49, 99, 2-35, 2-36, 2-37, 2-38, 2-51 und 2-70 (siehe Tabellen 1 und 2) im Test sehr gute herbizide Wirkung gegen Schadpflanzen, die typisch für Reiskulturen sind, wie z.B. Cyperus monti, Echinochloa crus-galli und Sagittaria pygmaea.

4. Kulturpflanzenverträglichkeit

In weiteren Versuchen im Gewächshaus werden Samen einer größeren Anzahl von Kulturpflanzen und Unkräutern in sandigem Lehmboden ausgelegt und mit Erde abgedeckt. Ein Teil der Töpfe wird sofort wie unter Abschnitt 1 beschrieben behandelt, die übrigen im Gewächshaus aufgestellt, bis die Pflanzen zwei bis drei echte Blätter entwickelt haben und dann wie unter Abschnitt 2 beschrieben mit den erfindungsgemäßen Substanzen der Formel (I) in unterschiedlichen Dosierungen besprüht. Vier bis fünf Wochen nach der Applikation und Standzeit im Gewächshaus wird mittels optischer Bonitur festgestellt, daß die erfindungsgemäßen Verbindungen zweikeimblättrige Kulturen wie z.B. Soja, Baumwolle, Raps, Zuckerrüben und Kartoffeln im Vorund Nachauflaufverfahren selbst bei hohen Wirkstoffdosierungen ungeschädigt lassen. Einige Substanzen schonen darüber hinaus auch Gramineen-Kulturen wie z.B. Gerste, Weizen, Roggen, Sorghum-Hirsen, Mais oder Reis. Die Verbindungen der Formel (I) zeigen teilweise eine hohe Selektivität und eignen sich deshalb zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzenwuchs in landwirtschaftlichen Kulturen.

Patentansprüche:

1. Verbindungen der Formel (I) und deren Salze,

$$\begin{array}{c|c}
R^{2} & & & & & & & & & & \\
R^{2} & & & & & & & & & \\
N & & & & & & & & \\
N & & & & & & & \\
R^{3} & & & & & & & \\
R^{4} & & & & & & \\
\end{array}$$
(1)

worin

 R^1 (C₁-C₆)Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Cyano, Nitro, Thiocyanato, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkinyl, (C_3-C_9) Cycloalkyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und Heterocyclyl mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Ring unsubstituiert oder substituiert ist,

substituiert ist, oder

Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert ist,

R² und R³ jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino oder Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 10 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclyloxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist, oder einen Acylrest oder

- R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 4 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom die gegebenenfalls weiteren Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S ausgewählt sind und der Rest unsubstituiert oder substituiert ist,
- R⁴ Wasserstoff, Amino, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6
 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen
 Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis
 10 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclyloxyrest oder
 Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3
 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf
 letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist, oder einen
 Acylrest,
- R⁵ Wasserstoff, Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato oder einen Rest der Formel -B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie unten definiert sind,
- Alkylenrest mit 1 bis 5 linear verknüpften C-Atomen oder Alkenylen oder Alkinylen mit jeweils 2 bis 5 linear verknüpften C-Atomen, wobei jeder der drei letztgenannten Diradikale unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato und einen Rest der Formel -B²-Y² substituiert ist, OH, NH₂, NO₂, COOH, CN,
- (X)_n n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, OH, NH₂, NO₂, CHO, COOH, CN, SCN oder einen Rest der Formel -B°-R, wobei B° wie unten definiert ist und R einen acyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 C-Atomen, der unsubstituiert oder substituiert ist, bedeutet, oder einen Rest der Formel -B°-R°, wobei B° wie unten definiert ist und R° einen aromatischen, gesättigten oder teilgesättigten carbocyclischen oder heterocyclischen Rest bedeutet, wobei der cyclische Rest unsubstituiert oder substituiert ist, oder zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus

der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

- n 0, 1, 2, 3, 4 oder 5,
- B^{o},B^{1},B^{2} jeweils unabhängig voneinander eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel -0-, -S(0) $_{p}$ -, -S(0) $_{p}$ -0-, -O-S(0) $_{p}$ -, -CO-, -O-CO-, -S-CO-, -CO-S-, -S-CS-, -CS-S, -O-CO-O-, -NR'-, -O-NR'-, -NR'-O-, -NR'-CO-, -CO-NR'-, -O-CO-NR'-, -NR'-CO-O- oder -NR'-CO-NR'', wobei p = 0, 1 oder 2 ist und R' und R'' unabhängig voneinander Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 6 C-Atomen, Phenyl, Benzyl, Cycloalkyl mit 3 bis 6 C-Atomen oder Alkanoyl mit 1 bis 6 C-Atomen sind,
- Y¹,Y² jeweils unabhängig voneinander H oder einen acyclischen
 Kohlenwasserstoffrest oder einen cyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 3
 bis 8 C-Atomen oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 9 Ringatomen
 und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder
 der drei letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist,
 bedeuten.
- 2. Verbindungen der Formel (I) und deren Salze nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
- R^1 (C₁-C₄)Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, $(C_1\text{-}C_4)$ Alkoxy, $(C_1\text{-}C_4)$ Alkylthio, $(C_1\text{-}C_4)$ Alkylsulfonyl und $(C_3\text{-}C_9)$ Cycloalkyl, das unsubstituiert oder substituiert ist, und Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, $(C_1\text{-}C_4)$ Alkyl und $(C_1\text{-}C_4)$ Haloalkyl, $(C_1\text{-}C_4)$ Alkoxy, $(C_1\text{-}C_4)$ Haloalkoxy, $(C_1\text{-}C_4)$ Alkylthio, Amino, Mono- und Di[$(C_1\text{-}C_4)$ alkyl]amino, $(C_1\text{-}C_4)$ Alkanoylamino, Benzoylamino, Nitro, Cyano, $[(C_1\text{-}C_4)$ Alkyl]carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1\text{-}C_4)$ alkyl]aminocarbonyl und

 (C_1-C_4) Alkylsulfonyl substituiert ist, und Heterocyclyl mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei der Ring unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

substituiert ist, oder

Phenyl, das unsubstituiert oder substituiert ist,

R² und R³ jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino oder Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclyloxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C1-C4)Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkinyl, (C2-C4)Alkenyloxy, (C2-C4)Alkinyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1-C_4)alkyl]$ -aminocarbonyl, $(C_1-C_4)Alkylsulfinyl$, (C_1-C_4) Haloalkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch $(C_1-C_4)Alkyl$ und $(C_1-C_4)Haloalkyl$ substituiert ist,

oder einen Acylrest oder

 R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N, O und S ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

- R⁴ Wasserstoff, Amino, Alkylamino oder Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen im Alkylrest, einen acyclischen oder cyclischen Kohlenwasserstoffrest oder Kohlenwasserstoffoxyrest mit jeweils 1 bis 6 C-Atomen oder einen Heterocyclylrest, Heterocyclyloxyrest oder Heterocyclylaminorest mit jeweils 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der fünf letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_2-C_4) Alkenyl, (C_2-C_4) Alkinyl, (C_2-C_4) Alkenyloxy, (C₂-C₄)Alkinyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, $[(C_1-C_4)Alkoxy]$ -carbonyl, $[(C_1-C_4)Alkyl]$ carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C1-C4)alkyl]-aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylsulfinyl, (C_1-C_4) Haloalkylsulfinyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl, (C₁-C₄)Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C₁-C₄)Alkyl und (C₁-C₄)Haloalkyl substituiert ist, oder einen Acylrest,
- R⁵ Wasserstoff, Halogen oder einen Rest der Formel -B¹-Y¹, wobei B¹ und Y¹ wie unten definiert sind,
- A einen divalenten Rest der Formel A¹, A², A³ oder A⁴

 R^6 , R^7 , R^8 , R^9 , R^{10} , R^{11} , R^{12} , R^{13} , R^{14} , R^{15} , R^{16} , R^{17} , R^{18} , R^{19} jeweils unabhängig voneinander Halogen, Nitro, Cyano, Thiocyanato oder einen Rest der Formel $-B^2-Y^2$.

- (X)_n n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, OH, NH₂, NO₂, CHO, COOH, CN, SCN oder einen Rest der Formel -B°-R, wobei B° wie unten definiert ist und R (C₁-C₆)Alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl oder (C₂-C₆)Alkinyl, wobei jeder der 3 letztgenannten Reste unsubstituiert oder substituiert ist, bedeutet, oder einen Rest der Formel -B°-R°, wobei B° wie unten definiert ist und R° (C₃-C₆)Cycloalkyl, (C₃-C₆)Cycloalkenyl oder Phenyl bedeutet, wobei jeder der letztgenannten drei Reste unsubstituiert oder substituiert ist, oder zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,
- n 0, 1, 2, 3 oder 4,
- B^o,B¹,B² jeweils unabhängig voneinander eine direkte Bindung oder eine divalente Gruppe der Formel
 - -O-, -S-, -CO-, -O-CO-, -CO-O-, -S-CO-, -CO-S-, -O-CO-O-, -NR'-, -NR'-CO-, -CO-NR'-, -O-CO-NR'-, -NR'-CO-O- oder -NR'-CONR''-, wobei R' und R'' unabhängig voneinander H oder (C₁-C₄)Alkyl sind,
- Y¹,Y² jeweils unabhängig voneinander H oder einen acyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 6 C-Atomen, einen cyclischen Kohlenwasserstoffrest mit 3 bis 6 C-Atomen oder einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 9 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der drei letztgenannten Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, (C₂-C₄)Alkenyl, (C₂-C₄)Alkinyl, (C₂-C₄)Alkenyloxy, (C₂-C₄)Alkinyloxy, Hydroxy, Amino, Acylamino, Mono- und Dialkylamino, Nitro, Carboxy, Cyano, Azido, [(C₁-C₄)Alkoxy]-carbonyl, [(C₁-C₄)Alkyl]-carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di-[(C₁-C₄)alkyl]-aminocarbonyl, (C₁-C₄)Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)Alkylsulfonyl,

 (C_1-C_4) Haloalkylsulfonyl und, im Falle cyclischer Reste, auch (C_1-C_4) Alkyl und (C_1-C_4) Haloalkyl substituiert ist, bedeuten.

- 3. Verbindungen der Formel (I) und deren Salze nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß
- R^1 (C₁-C₄)Alkyl,

das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_3-C_6) Cycloalkyl, das unsubstituiert oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) -Alkoxy und (C_1-C_4) Haloalkoxy substituiert ist, und Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, Nitro, Cyano, $[(C_1-C_2)$ Alkyl]carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- $[(C_1-C_2)$ Alkyl]aminocarbonyl und (C_1-C_4) Alkylsulfonyl substituiert ist.

substituiert ist, oder

Phenyl, das unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) -Alkoxy, (C_1-C_4) Haloalkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, Nitro, Cyano, $[(C_1-C_2)Alkyl]$ carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und $Di-[(C_1-C_2)alkyl]$ aminocarbonyl und (C_1-C_4) Alkylsulfonyl substituiert ist,

 R^2 und R^3 unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl, $(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{Alkyl},$ $\mathsf{Cyano}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}, \; (\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{Alkylamino}, \; \mathsf{Di}\mathsf{-}[(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}]\mathsf{-}\mathsf{amino},$ $\mathsf{Halo}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}, \; \mathsf{Hydroxy}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}, \; (\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{Alkoxy}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl},$ $\mathsf{Halo}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkoxy}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}, \; (\mathsf{C}_2\mathsf{-}\mathsf{C}_6)\mathsf{Alkenyl}, \; \mathsf{Halo}\mathsf{-}(\mathsf{C}_2\mathsf{-}\mathsf{C}_6)\mathsf{Alkenyl},$ $\mathsf{(C}_2\mathsf{-}\mathsf{C}_6)\mathsf{Alkinyl}, \; \mathsf{Halo}\mathsf{-}(\mathsf{C}_2\mathsf{-}\mathsf{C}_6)\mathsf{alkinyl}, \; (\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}\mathsf{amino}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl},$ $\mathsf{Di}\mathsf{-}[(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}]\mathsf{-}\mathsf{amino}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl}, \; (\mathsf{C}_3\mathsf{-}\mathsf{C}_9)\mathsf{Cycloalkylamino}\mathsf{-}(\mathsf{C}_1\mathsf{-}\mathsf{C}_4)\mathsf{alkyl},$

(C₃-C₉)Cycloalkyl, (C₃-C₉)Heterocyclyl-(C₁-C₄)alkyl mit 3 bis 9 Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe (C₁-C₄)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenylcarbonyl-(C₁-C₄)alkyl, $(C_1-C_4)Alkoxy-carbonyl-(C_1-C_4)alkyl, (C_1-C_4)Alkylamino-carbonyl-(C$ (C_1-C_4) aikyi, (C_1-C_4) Aikyi-carbonyi, (C_1-C_4) Aikoxy-carbonyi, Aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylamino-carbonyl, Phenoxy- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocyclyloxy, Heterocyclylthio, oder einen der letztgenannten 16 Reste, der im acyclischen Teil oder im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) Haloalkoxy, Formyl, $(C_1-C_4)Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4)Alkoxy-carbonyl, (C_1-C_4)Alkoxy,$ substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält, oder

 R^2 und R^3 gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR^2R^3 einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N, O und S ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

 $\begin{array}{lll} R^4 & \text{Wasserstoff, Amino, Formyl, } (C_1-C_4)\text{Alkyl, Cyano-}(C_1-C_4)\text{alkyl,} \\ (C_1-C_4)\text{Alkylamino, Di-}[(C_1-C_4)\text{alkyl}]\text{-amino, Halo-}(C_1-C_4)\text{alkyl,} \\ \text{Hydroxy-}(C_1-C_4)\text{alkyl, } (C_1-C_4)\text{Alkoxy-}(C_1-C_4)\text{alkyl,} \\ \text{Halo}(C_1-C_4)\text{alkoxy-}(C_1-C_4)\text{alkyl, } (C_2-C_6)\text{Alkenyl, Halo-}(C_2-C_6)\text{Alkenyl,} \\ (C_2-C_6)\text{Alkinyl, Halo-}(C_2-C_6)\text{alkinyl, } (C_1-C_4)\text{Alkylamino-}(C_1-C_4)\text{alkyl,} \\ \text{Di-}[(C_1-C_4)\text{alkyl}]\text{-amino-}(C_1-C_4)\text{alkyl, } (C_3-C_9)\text{Cycloalkylamino-}(C_1-C_4)\text{alkyl,} \\ (C_3-C_9)\text{Cycloalkyl, } (C_3-C_9)\text{Heterocyclyl-}(C_1-C_4)\text{alkyl mit 3 bis 9} \\ \text{Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3} \\ \end{array}$

Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe (C_1 - C_4)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenylcarbonyl-(C_1 - C_4)alkyl, (C_1 - C_4)Alkoxy-carbonyl-(C_1 - C_4)alkyl, (C_1 - C_4)Alkylamino-carbonyl-(C_1 - C_4)Alkyl-carbonyl, (C_1 - C_4)Alkoxy-carbonyl, Aminocarbonyl, (C_1 - C_4)Alkylamino-carbonyl, Phenoxy-(C_1 - C_4)alkyl, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocyclyloxy, Heterocyclylthio oder einen der letztgenannten 16 Reste, der im acyclischen Teil oder im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C_1 - C_4)Alkyl, (C_1 - C_4)Alkoxy, (C_1 - C_4)Alkylthio, (C_1 - C_4)Haloalkyl, (C_1 - C_4)Haloalkoxy, Formyl, (C_1 - C_4)Alkyl-carbonyl, (C_1 - C_4)Alkoxy-carbonyl, (C_1 - C_4)Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S enthält,

R⁵ Wasserstoff, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl oder (C₃-C₆)Cycloalkyl, einen divalenten Rest der genannten Formel A¹, A², A³ oder A⁴, R⁶,R⁷,R⁸,R⁹,R¹⁰,R¹¹,R¹²,R¹³,R¹⁴,R¹⁵,R¹⁶,R¹⁷,R¹⁸,R¹⁹ jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, (C₁-C₈)Alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl, (C₂-C₆)Alkinyl, (C₃-C₉)Cycloalkyl, (C₃-C₉)Cycloalkenyl, Phenyl, Heterocyclyl mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 3 Heteroringatomen aus der Gruppe N, O und S, wobei jeder der letztgenannten 7 Reste unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkoxy, (C₁-C₄)Haloalkoxy, (C₁-C₄)Alkylthio, Amino, Mono- und Di[(C₁- C_4)alkyl]amino, (C_1 - C_4)Alkanoylamino, Benzoylamino, Nitro, Cyano, [(C₁-C₄)Alkyl]carbonyl, Formyl, Carbamoyl, Mono- und Di- (C_1-C_4) alkyl]aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylsulfonyl und, im Fall cyclischer Reste, auch (C_1-C_4) Alkyl und (C_1-C_4) Haloalkyl substituiert ist, $(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, Amino, Nitro, Formyl, Carboxy, Cyano, Thiocyanato, $(C_1-C_4)Alkyl$, Cyano- $(C_1-C_4)alkyl$, $(C_1-C_4)Alkoxy$, $(C_1-C_4)Alkylamino$,

Di-[(C_1 - C_4)alkyl]-amino, Halo-(C_1 - C_4)alkyl, Hydroxy-(C_1 - C_4)alkyl, (C_1 - C_4)Alkoxy-(C_1 - C_4)alkyl, Halo(C_1 - C_4)alkoxy-(C_1 - C_4)alkyl, (C_1 - C_4)Alkylthio, Halo-(C_1 - C_4)alkylthio, (C_2 - C_6)Alkenyl, Halo-(C_2 - C_6)Alkenyl, (C_2 - C_6)Alkinyl, Halo-(C_2 - C_6)alkinyl, (C_1 - C_4)Alkylamino-(C_1 - C_4)alkyl, Di-[(C_1 - C_4)alkyl]-amino-(C_1 - C_4)alkyl, (C_3 - C_9)Cycloalkylamino-(C_1 - C_4)alkyl, (C_3 - C_9)Cycloalkyl mit 3 bis 9 Ringgliedern, wobei die cyclischen Gruppen in den letztgenannten 3 Resten unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe (C_1 - C_4)Alkyl, Halogen und Cyano substituiert sind, oder Phenyl, Phenoxy, Phenylcarbonyl, Phenylcarbonyl-(C_1 - C_4)Alkylamino-carbonyl-(C_1 - C_4)Alkoxy-carbonyl-(C_1 - C_4)Alkyl-carbonyl, (C_1 - C_4)Alkylamino-carbonyl, Aminocarbonyl, (C_1 - C_4)Alkylamino-carbonyl, Phenoxy-(C_1 - C_4)alkyl, Hataropychyl, Hat

Aminocarbonyl, (C_1-C_4) Alkylamino-carbonyl, Phenoxy- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl- (C_1-C_4) alkyl, Heterocyclyl, Heterocyclylamino, Heterocyclyloxy, Heterocyclylthio oder einen der letztgenannten 16 Reste, der im acyclischen Teil oder im cyclischen Teil durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, Nitro, Cyano, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy, (C_1-C_4) Alkylthio, (C_1-C_4) Haloalkyl, (C_1-C_4) Haloalkoxy, Formyl, (C_1-C_4) Alkyl-carbonyl, (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl, (C_1-C_4) Alkoxy, substituiert ist, wobei Heterocyclyl in den Resten jeweils 3 bis 9 Ringatome und 1 bis 3 Heteroringatome aus der Gruppe N, O und S

zwei benachbarte Reste X gemeinsam einen ankondensierten Cyclus mit 4 bis 6 Ringatomen, der carbocyclisch ist oder Heteroringatome aus der Gruppe O, S und N enthält und der unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl und Oxo substituiert ist,

bedeuten.

enthält, oder

- 4. Verbindung der Formel (I) und deren Salze nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß
- R^1 (C_1 - C_4)Alkyl, (C_1 - C_4)Haloalkyl, Benzyl oder [(C_3 - C_6)Cycloalkyl]-(C_1 - C_2)alkyl,
- R² und R³ unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy-(C₁-C₄)alkyl, (C₂-C₆)Alkenyl, (C₂-C₆)Alkinyl, (C₁-C₄)Alkylamino-(C₁-C₄)alkyl, Di-[(C₁-C₄)alkyl]-amino-(C₁-C₄)alkyl oder Phenyl, Phenyl-(C₁-C₄)alkyl oder Phenoxy-carbonyl oder einen der letztgenannten drei Reste, der im Phenylteil bis zu dreifach durch Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Alkoxy und (C₁-C₄)Alkoxy-carbonyl substituiert ist, oder R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 3 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2
 - Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N und O ausgewählt ist und der Rest unsubstituiert oder durch einen oder mehrere Reste aus der Gruppe Halogen, (C₁-C₄)Alkyl und Oxo substituiert ist,
- Wasserstoff, Amino, Formyl, (C_1-C_4) Alkyl, Di- $[(C_1-C_4)$ alkyl]-amino, (C_1-C_4) Alkoxy- (C_1-C_4) alkyl, (C_2-C_6) Alkenyl, (C_2-C_6) Alkinyl, (C_1-C_4) Dialkylamino- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl, Phenoxy- (C_1-C_4) alkyl, Phenyl- (C_1-C_4) alkyl, Phenoxy-carbonyl, Phenylamino-carbonyl oder einen der letztgenannten fünf Reste, der im Phenylteil einfach bis dreifach durch Reste aus der Gruppe Halogen, (C_1-C_4) Alkyl, (C_1-C_4) Alkoxy und (C_1-C_4) Alkoxy-carbonyl substituiert ist,
- R^5 Wasserstoff, $(C_1-C_4)Alkyl$, $(C_1-C_4)Halogenalkyl$ oder $(C_3-C_6)Cycloalkyl$,
- A einen divalenten Rest der genannten Formel A¹, A², A³ oder A⁴,
- $R^6, R^7, R^8, R^9, R^{10}, R^{11}, R^{12}, R^{13}, R^{14}, R^{15}, R^{16}, R^{17}, R^{18}, R^{19}$ jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen oder (C_1 - C_4)Alkyl,
- $(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, $(C_1-C_4)Alkyl$ oder $(C_1-C_4)Alkoxy$ bedeuten.

- Verbindungen der Formel (I) und deren Salze nach einem der Ansprüche1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß
- R^1 (C₁-C₄)Alkyl, (C₁-C₄)Haloalkyl oder [(C₃-C₆)Cycloalkyl]-methyl,
- ${\sf R}^2$ und ${\sf R}^3$ unabhängig voneinander Wasserstoff, Amino, Formyl oder $({\sf C}_1{\text{-}}{\sf C}_4){\sf Alkyl}$ oder

R² und R³ gemeinsam mit dem Stickstoffatom der Gruppe NR²R³ einen heterocyclischen Rest mit 4 bis 6 Ringatomen und 1 bis 2 Heteroringatomen, wobei neben dem N-Atom das gegebenenfalls weitere Heteroringatom aus der Gruppe N und O ausgewählt ist,

- R^4 Wasserstoff oder $(C_1-C_4)Alkyl$,
- R^5 H, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Haloalkyl,
- A einen divalenten Rest der genannten Formel A¹, A² oder A³,
- R^6 , R^7 , R^8 , R^9 , R^{10} , R^{11} , R^{12} , R^{13} jeweils unabhängig voneinander Wasserstoff oder (C₁-C₄)Alkyl,
- $(X)_n$ n Substituenten X und dabei X jeweils unabhängig voneinander Halogen, Hydroxy, (C_1-C_4) Alkyl oder (C_1-C_4) Alkoxy bedeuten.
- 6. Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) oder deren Salze nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß man
- a) eine Verbindung der Formel (II),

$$R^1$$
 - Fu (II)

worin Fu eine funktionelle Gruppe aus der Gruppe Carbonsäureester, Carbonsäureorthoester, Carbonsäurechlorid, Carbonsäureamid, Carbonsäureanhydrid und Trichlormethyl bedeutet, mit einem Biguanidid der Formel (III) oder einem Säureadditionssalz hiervon

65

umsetzt oder

b) eine Verbindung der Formel (IV),

$$\begin{array}{c|c}
R^{1} \\
N \\
N \\
Z^{1}
\end{array}$$

worin Z¹ einen austauschfähigen Rest oder eine Abgangsgruppe bedeutet, mit einem geeigneten Amin der Formel (V) oder einem Säureadditionssalz hiervon

$$R^{4}-NH-CH-A \longrightarrow (V)$$

umsetzt,

wobei in den Formeln (II), (III), (IV) und (V) die Reste R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 , A und X sowie n wie in Formel (I) definiert sind.

7. Herbizides oder pflanzenwachstumsregulierende Mittel, dadurch gekennzeichnet, daß es mindestens eine Verbindung der Formel (I) oder deren Salz nach einem der Ansprüche 1 bis 5 und im Pflanzenschutz übliche Formulierungshilfsmittel enthält.

- 8. Verfahren zur Bekämpfung von Schadpflanzen oder zur Wachstumsregulierung von Pflanzen, dadurch gekennzeichnet, daß man eine wirksame Menge von mindestens einer Verbindung der Formel (I) oder deren Salz nach einem der Ansprüche 1 bis 5 auf die Pflanzen, Pflanzensamen oder die Anbaufläche appliziert.
- 9. Verwendung von Verbindungen der Formel (I) oder deren Salzen nach einem der Ansprüche 1 bis 5 als Herbizide und Pflanzenwachstumsregulatoren.
- 10. Verbindungen der Formel (IV),

$$\begin{array}{c|c}
R^{1} \\
N \\
N \\
Z^{1}
\end{array}$$
(IV)

worin R^1 , R^2 , R^3 und Z^1 wie in Formel (I) nach Anspruch 6 definiert sind.

PCT/EP 96/03442

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 C07D251/18 A01N43 A01N43/70 C07D251/16 C07D251/22 C07D405/06 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC **B. FIELDS SEARCHED** Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 CO7D A01N Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Category * Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. US 3 816 419 A (CROSS B ET AL) 11 June X,Y 1-9 1974 cited in the application see the whole document Y WO 95 06642 A (BAYER AG ; BECK GUNTHER 1-9 (DE); HEITZER HELMUT (DE); BAASNER BERND (D) 9 March 1995 see the whole document Y EP 0 411 153 A (IDEMITSU KOSAN CO) 6 1-9 February 1991 see the whole document US 3 758 471 A (MAEDA A ET AL) 11 X 1-6 September 1973 siehe die Beispiele -/--Further documents are listed in the continuation of box C. X X Patent family members are listed in annex. * Special categories of cited documents: "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance invention "E" earlier document but published on or after the international "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such docu-ments, such combination being obvious to a person skilled in the art. O document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means in the art. document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 4-02-97 28 October 1996 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016 Steendijk, M

2

International application No.

PCT/ EP 96/ 03442

Box I	Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)
This inte	ernational search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:
1.	Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2.	Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3.	Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).
Box II	Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)
This Inte	ernational Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
1.	Claims 1-9 Claim 10
1.	As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.	As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.	As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. X 1-9	No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:
Remark	on Protest The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
	No protest accompanied the payment of additional search fees.

. .:mational Application No
PCT/EP 96/03442

		PCT/EP 96/03442
	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Х	EP 0 356 412 A (UCB SA) 28 February 1990 see example 15	1-3,6
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 7746 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class B03, AN 77-81704Y XP002016136 & JP 52 083 582 A (MITSUBISHI CHEM IND KK) , 12 July 1977 see abstract	1-6
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 110, no. 13, 27 March 1989 Columbus, Ohio, US; abstract no. 114801, KELAREV V I ET AL: "Synthesis and properties of sym-triazine derivatives. 8. Synthesis of amino- and alkoxy-substituted sym-triazines containing fragments of sterically hindered phenol starting from 2,4-bis(trichloromethyl)-sym -triazines" XP002016129 see abstract & KHIM. GETEROTSIKL. SOEDIN. (KGSSAQ,04538234);88; (5); PP.681-6, MOSK. INST. NEFTI GAZA; MOSCOW; USSR (SU),	1-3,6
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 086, no. 7, 14 February 1977 Columbus, Ohio, US; abstract no. 037551, TOBE A: "Pharmacological studies of triazine derivatives. I. General pharmacological actions" XP002016130 see abstract & YAKUGAKU ZASSHI (YKKZAJ);76; VOL.96 (2); PP.223-31, MITSUBISHI CHEM. IND., LTD.; CENT. RES. LAB.; KAWASAKI; JAPAN,	1-6
x	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 090, no. 3, 15 January 1979 Columbus, Ohio, US; abstract no. 022979, SLUKA J ET AL:	1-3,6
·	"2,4-Diamino-6-phenyl-1,3,5-triazines" XP002016131 see abstract & COLLECT. CZECH. CHEM. COMMUN. (CCCCAK,0366547X);78; VOL.43 (6); PP.1639-46, RES. INST. PHARM. BIOCHEM.; PRAGUE; CZECH.,	
	-/	
		· .

2

- mational Application No
PCT/EP 96/03442

C.(Continu	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	PCT/EP 96/03442
ategory *		Relevant to claim No.
x	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 089, no. 5, 31 July 1978 Columbus, Ohio, US; abstract no. 043338, SCIORTINO T ET AL: "New substituted s-triazines of possible pharmacological interest" XP002016132 see abstract & BOLL. CHIM. FARM. (BCFAAI,00066648);77; VOL.116 (11); PP.637-43, UNIV. TRIESTE; IST. TEC. FARM.; TRIESTE; ITALY,	1-6
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 088, no. 17, 24 April 1978 Columbus, Ohio, US; abstract no. 121115, OVSEPYAN T R ET AL: "Synthesis and mutagenic action of 6-chloromethyl, cyanomethyl, and.betaaminoethyl derivatives of substituted 1,3,5-triazines" XP002016133 see abstract & KHIMFARM. ZH. (KHFZAN,00231134);77; VOL.11 (12); PP.35-9, INST. TONKOI ORG. KHIM. IM. MNDZHOYANA; YEREVAN; USSR,	1-6
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 079, no. 17, 29 October 1973 Columbus, Ohio, US; abstract no. 105207, GUIOCA M V: "New substituted triazines and their diuretic activity" XP002016134 see abstract & ANN. PHARM. FR. (APFRAD);73; VOL.31 (4); PP.283-92, UNIV. ATHENS; LAB. PHARM. CHEM.; ATHENS; GREECE,	1-6
K	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 079, no. 15, 15 October 1973 Columbus, Ohio, US; abstract no. 092165, COLAUTTI A ET AL: "Substituted S-triazines and amidinoureas of potential pharmacological activity" XP002016135 see abstract & FARMACO, ED. SCI. (FRPSAX);73; VOL.28 (7); PP.531-8, UNIV. TRIESTE; IST. CHIM. FARM. TOSSICOL.; TRIESTE; ITALY,	1-3,6

2

Information on patent family members

International Application No PCT/ EP 96/03442

Patent document ited in search report	Publication date	Patent familiy member(s)	Publication date
US-A-3816419	11-06-74	US-A- 3932167	13-01-76
WO-A-9506642	09-03-95	DE-A- 4329598 AU-A- 7536694	09-03-95 22-03-95
EP-A-0411153	06-02-91	AT-T- 142630 AU-B- 628138 AU-A- 5082790 CA-A,C 2027562 DE-D- 69028461 EP-A- 0620220 ES-T- 2094150 WO-A- 9009378 JP-A- 7112981 JP-B- 7039400 KR-B- 9401728 LV-B- 10864 RU-C- 2058983 US-A- 5403815 US-A- 5290754 LT-A,B 640	15-09-96 10-09-92 05-09-90 21-08-90 17-10-96 19-10-94 16-01-97 23-08-90 02-05-95 01-05-95 05-03-94 20-06-96 27-04-96 04-04-95 01-03-94 27-12-94
US-A-3758471	11-09-73	BE-A- 726947 BE-A- 726948 DE-A- 1907589 DE-A- 1913154 FR-A- 2005901 FR-A- 2005902 GB-A- 1250971 GB-A- 1252870	01-07-69 01-07-69 30-10-69 04-12-69 19-12-69 19-12-69 27-10-71 10-11-71
EP-A-0356412	28-02-90	AU-B- 616140 AU-A- 3991889 CA-A- 1329772 IE-B- 61828 IL-A- 91244 JP-A- 2108676 US-A- 4956363	17-10-91 22-02-90 24-05-94 30-11-94 31-07-94 20-04-90 11-09-90

nternationales Aktenzeichen
PCT/EP 96/03442

			7 11 30/03442
A. KLASS IPK 6	sifizierung des anmeldungsgegenstandes C07D251/18 A01N43/70 C07D251,	/16 C07D251/22	C07D405/06
Nach der Ir	internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen K	Klassifikation und der IPK	
	ERCHIERTE GEBIETE		
Recherchier IPK 6	erter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssyml CO7D A01N	bole)	
Recherchier	rte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, s	soweit diese unter die recherchiert	en Gebiete fallen
Während de	der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (1	Name der Datenbank und evtl. v	erwendete Suchbegriffe)
	ESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Anga	ibe der in Betracht kommenden Te	eile Betr. Anspruch Nr.
Х,Ү	US 3 816 419 A (CROSS B ET AL) 11 1974 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument	1.Juni	1-9
Y	WO 95 06642 A (BAYER AG ; BECK GUN (DE); HEITZER HELMUT (DE); BAASNE (D) 9.März 1995 siehe das ganze Dokument		1-9
Y	EP 0 411 153 A (IDEMITSU KOSAN CO 6.Februar 1991 siehe das ganze Dokument))	1-9
Х	US 3 758 471 A (MAEDA A ET AL) 11.September 1973 siehe die Beispiele		1-6
		-/	
	tere-Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu lehmen	X Siehe Anhang Patentfam	nilie
"A" Veröffe aber ni "E" älteres l Anmel "L" Veröffe scheine	fentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen ildedatum veröffentlicht worden ist entlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- en zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer	oder dem Prioritätsdatum ver Anmeldung nicht kollidiert, s Erfindung zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonde kann allein aufgrund dieser V erfürderischer Tätiskeit beruh	e nach dem internationalen Anmeldedatum röffentlicht worden ist und mit der sondern nur zumVerständnis des der n Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden erer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung Veröffentlichung nicht als neu oder auf hend betrachtet werden
son od ausgefi 'O' Veröffe eine Be 'P' Veröffe	entlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, lenutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht entlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatun, aber nach	kann nicht als auf erfinderisch werden, wenn die Veröffentli	
	Abschlusses der internationalen Recherche 8.0ktober 1996	Absendedatum des internation 4.02.97	nalen Recherchenberichts
Name und P	Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL · 2280 HV Rijswijk Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+ 31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Steendijk, M	

Internationales Aktenzeichen

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

PCT/EP 96/03442

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 1 auf Blatt
Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:
1. Ansprüche Nr. weil Sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
Ansprüche Nr. weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
3. Ansprüche Nr. weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.
Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)
Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:
1. Ansprüche 1–9 2. Anspruch 10
Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche der internationalen Anmeldung.
2. Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Internationale Recherchenbehörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche der internationalen Anmeldung, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt: 1-9
Bemerkungen kinsichtlich eines Widerspruchs Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt. Die Zahlung zusätzlicher Gebühren erfolgte ohne Widerspruch.

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 96/03442

	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommen EP 0 356 412 A (UCB SA) 28.Februar 1990 siehe Beispiel 15 DATABASE WPI Section Ch, Week 7746 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class B03, AN 77-81704Y XP002016136 & JP 52 083 582 A (MITSUBISHI CHEM IND KK) , 12.Juli 1977 siehe Zusammenfassung CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 110, no. 13, 27.März 1989 Columbus, Ohio, US;	nden Teile	Betr. Anspruch Nr. 1-3,6 1-6
X	EP 0 356 412 A (UCB SA) 28.Februar 1990 siehe Beispiel 15 DATABASE WPI Section Ch, Week 7746 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class B03, AN 77-81704Y XP002016136 & JP 52 083 582 A (MITSUBISHI CHEM IND KK), 12.Juli 1977 siehe Zusammenfassung CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 110, no. 13, 27.März 1989 Columbus, Ohio, US;	nden Teile	1-3,6
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 7746 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class B03, AN 77-81704Y XP002016136 & JP 52 083 582 A (MITSUBISHI CHEM IND KK), 12.Juli 1977 siehe Zusammenfassung CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 110, no. 13, 27.März 1989 Columbus, Ohio, US;		1-6
	Section Ch, Week 7746 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class B03, AN 77-81704Y XP002016136 & JP 52 083 582 A (MITSUBISHI CHEM IND KK) , 12.Juli 1977 siehe Zusammenfassung CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 110, no. 13, 27.März 1989 Columbus, Ohio, US;		
X	27.März 1989 Columbus, Ohio, US;		1_2 6
·	abstract no. 114801, KELAREV V I ET AL: "Synthesis and properties of sym-triazine derivatives. 8. Synthesis of amino- and alkoxy-substituted sym-triazines containing fragments of sterically hindered phenol starting from 2,4-bis(trichloromethyl)-sym -triazines" XP002016129 siehe Zusammenfassung & KHIM. GETEROTSIKL. SOEDIN. (KGSSAQ,04538234);88; (5); PP.681-6, MOSK. INST. NEFTI GAZA;MOSCOW; USSR (SU),		1-3,6
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 086, no. 7, 14.Februar 1977 Columbus, Ohio, US; abstract no. 037551, TOBE A: "Pharmacological studies of triazine derivatives. I. General pharmacological actions" XP002016130 siehe Zusammenfassung & YAKUGAKU ZASSHI (YKKZAJ);76; VOL.96 (2); PP.223-31, MITSUBISHI CHEM. IND., LTD.;CENT. RES. LAB.; KAWASAKI; JAPAN,		1-6
	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 090, no. 3, 15. Januar 1979 Columbus, Ohio, US; abstract no. 022979, SLUKA J ET AL: "2,4-Diamino-6-phenyl-1,3,5-triazines" XP002016131 siehe Zusammenfassung & COLLECT. CZECH. CHEM. COMMUN. (CCCCAK,0366547X);78; VOL.43 (6); PP.1639-46, RES. INST. PHARM. BIOCHEM.; PRAGUE; CZECH.,		1-3,6
	-/		

2

enternationales Aktenzeichen
PCT/EP 96/03442

a ==			96/03442
	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komm	enden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 089, no. 5, 31.Juli 1978 Columbus, Ohio, US; abstract no. 043338, SCIORTINO T ET AL: "New substituted s-triazines of possible pharmacological interest" XP002016132 siehe Zusammenfassung & BOLL. CHIM. FARM. (BCFAAI,00066648);77; VOL.116 (11); PP.637-43, UNIV. TRIESTE; IST. TEC. FARM.; TRIESTE; ITALY,		1-6
x	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 088, no. 17, 24.April 1978 Columbus, Ohio, US; abstract no. 121115, OVSEPYAN T R ET AL: "Synthesis and mutagenic action of 6-chloromethyl, cyanomethyl, and.betaaminoethyl derivatives of substituted 1,3,5-triazines" XP002016133 siehe Zusammenfassung & KHIMFARM. ZH. (KHFZAN,00231134);77; VOL.11 (12); PP.35-9, INST. TONKOI ORG. KHIM. IM. MNDZHOYANA; YEREVAN; USSR,		1-6
(CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 079, no. 17, 29.0ktober 1973 Columbus, Ohio, US; abstract no. 105207, GUIOCA M V: "New substituted triazines and their diuretic activity" XP002016134 siehe Zusammenfassung & ANN. PHARM. FR. (APFRAD);73; VOL.31 (4); PP.283-92, UNIV. ATHENS; LAB. PHARM. CHEM.; ATHENS; GREECE,		1-6
	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 079, no. 15, 15.0ktober 1973 Columbus, Ohio, US; abstract no. 092165, COLAUTTI A ET AL: "Substituted S-triazines and amidinoureas of potential pharmacological activity" XP002016135 siehe Zusammenfassung & FARMACO, ED. SCI. (FRPSAX);73; VOL.28 (7); PP.531-8, UNIV. TRIESTE; IST. CHIM. FARM. TOSSICOL.; TRIESTE; ITALY,		1-3,6
	·	·	

2

PCT/EP 96/03442

Im Recherchenbericht geführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US-A-3816419	11-06-74	US-A- 3932167	13-01-76
WO-A-9506642	09-03-95	DE-A- 4329598 AU-A- 7536694	09-03-95 22-03-95
EP-A-0411153	06-02-91	AT-T- 142630 AU-B- 628138 AU-A- 5082790 CA-A,C 2027562 DE-D- 69028461 EP-A- 0620220 ES-T- 2094150 WO-A- 9009378 JP-A- 7112981 JP-B- 7039400 KR-B- 9401728 LV-B- 10864 RU-C- 2058983 US-A- 5403815 US-A- 5290754 LT-A,B 640	15-09-96 10-09-92 05-09-90 21-08-90 17-10-96 19-10-94 16-01-97 23-08-90 02-05-95 01-05-95 01-05-95 05-03-94 20-06-96 27-04-96 04-04-95 01-03-94 27-12-94
US-A-3758471	11-09-73	BE-A- 726947 BE-A- 726948 DE-A- 1907589 DE-A- 1913154 FR-A- 2005901 FR-A- 2005902 GB-A- 1250971 GB-A- 1252870	01-07-69 01-07-69 30-10-69 04-12-69 19-12-69 19-12-69 27-10-71
EP-A-0356412	28-02-90	AU-B- 616140 AU-A- 3991889 CA-A- 1329772 IE-B- 61828 IL-A- 91244 JP-A- 2108676 US-A- 4956363	17-10-91 22-02-90 24-05-94 30-11-94 31-07-94 20-04-90 11-09-90

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:
☐ BLACK BORDERS
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
☐ FADED TEXT OR DRAWING
BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
·

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.